



PDF hosted at the Radboud Repository of the Radboud University Nijmegen

The following full text is a publisher's version.

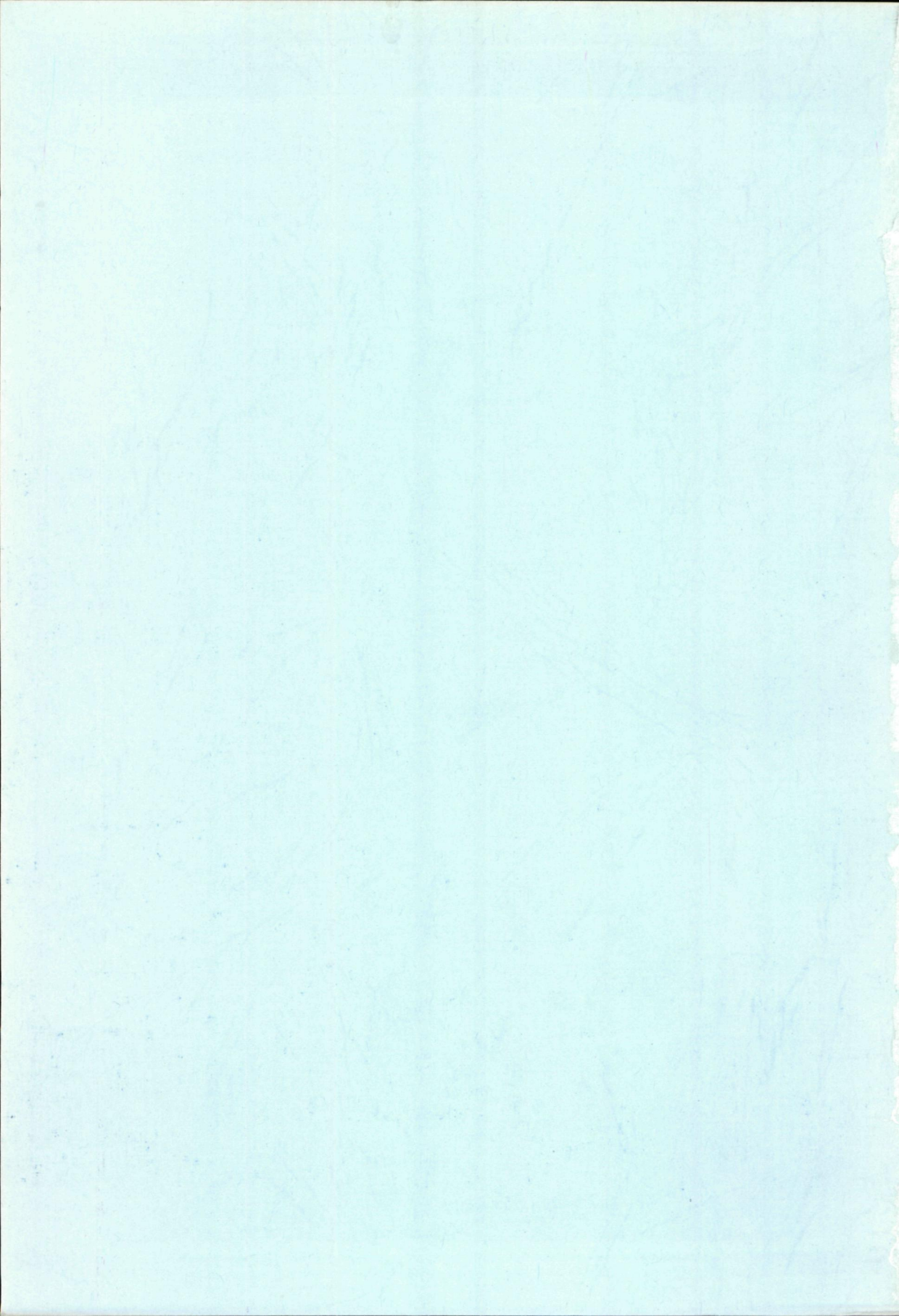
For additional information about this publication click this link.

<http://hdl.handle.net/2066/107542>

Please be advised that this information was generated on 2018-07-08 and may be subject to change.

HET FERMI-OPPERVLAK VAN WIT TIN

*v. Aernsbergen, Alekseevskii, v. Alphen, Animalu, Berlincourt, Besjes, v. Bommel, Brillouin, Croft, Devillers, Dingle, v.d. Dobbelsteen, Fermi, Gantmakher, v. Gelder, Gerritsen, v Gestel, Gold, de Haas, Harrison, Heine, Holten, Hoogenboom, v. Huet, Khaikin, Kolling, Kosevich, Landau, v. Langen, v. Leeuwen, Lieffering, Lifshitz, Love, Mase, Matthey, v.d. Meent, Meulemans, Miasek, Mugie, v. Nieuwstadt, Nix, Olsen, Onsager, Oor, Pippard, Priestley, v. Royen, Rutten, Schapers, Schenk, Schreurs, Shoenberg, v.d. Sluis, Stiles, Spruyt, **M.D. Stafleu**, Strik, Suffczynski, Tubbing, Vasseur, Verdijk, Weisz, Wolf.*



HET FERMI-OPPERVLAK VAN WIT TIN

PROMOTOR: PROF. DR. A.G.M. JANNER

Dit proefschrift is tot stand gekomen onder leiding van
DR. A.R. DE VROOMEN

HET FERMI-OPPERVLAK VAN WIT TIN

PROEFSCHRIFT

TER VERKRIJGING VAN DE GRAAD VAN DOCTOR
IN DE WISKUNDE EN NATUURWETENSCHAPPEN
AAN DE KATHOLIEKE UNIVERSITEIT TE NIJMEGEN,
OP GEZAG VAN DE RECTOR MAGNIFICUS DR. A.J.H. VENDRIK
HOGLERAAR IN DE FACULTEITEN DER GENEESKUNDE
EN DER WISKUNDE EN NATUURWETENSCHAPPEN,
VOLGENS HET BESLUIT VAN DE SENAAT IN HET OPENBAAR TE VERDEDIGEN
OP VRIJDAG 14 APRIL 1967 DES NAMIDDAGS TE 14 UUR

DOOR

MARINUS DIRK STAFLEU

GEBOREN TE LEIDEN

1967

THOBEN OFFSET NIJMEGEN

Hoe lief heb ik Uw wet!

Zij is mijn overdenking de ganse dag.

Aan alles, hoe volkomen ook, heb ik een einde gezien,
maar Uw gebod is onbegrensd.

Psalm 119: 97, 96

voor mijn vrouw
en mijn ouders

INHOUDSOPGAVE

blz.

Gebruikte afkortingen en eenheden	8
1. HET DE HAAS-VAN ALPHEN EFFECT	9
1.1. Inleiding	9
1.2. Eén-electron theorie	10
1.3. Interacties	13
1.4. Shoenberg-Stiles methode (RF)	14
2. MEETAPPARATUUR	18
2.1. Inleiding	18
2.2. RF apparatuur	19
2.3. Het magneetveld	23
2.4. Cryostaat en preparaten	27
3. MEETRESULTATEN	29
Inleiding	29
3.1. Algemeen overzicht	29
3.2. Gedetailleerde discussie van de meetresultaten	36
3.2.1. A, B, en N oscillaties	36
3.2.2. C en D oscillaties	43
3.2.3. E, F, H, K, L, en M_1 oscillaties	44
3.2.4. G en M_2 oscillaties	47
3.3. Andere metingen	49
3.3.1. Inleiding	49
3.3.2. Alekseevskii c.s.	49
3.3.3. Khaikin	49

3.3.4. Olsen	51
3.3.5. Gantmakher	51
3.3.6. Andere publicaties	54
4. INTERPRETATIE	56
Inleiding	56
4.1. Het bijna-vrije-electronen model voor wit tin	56
4.1.1. Tinparameters	56
4.1.2. Het bijna-vrije-electronen model	60
4.1.3. Constructie van het NFE voor wit tin	61
4.1.4. De roosterpotentiaal	65
4.2. Interpretatie van de meetresultaten	68
4.2.1. Inleiding	68
4.2.2. Derde zone	68
4.2.3. Vierde zone	72
4.2.4. Vijfde zone	80
4.2.5. Zesde zone	85
4.2.6. Samenvatting van de interpretatie	86
4.3. Discussie	90
4.3.1. Inleiding	90
4.3.2. De pseudopotentiaal.	90
4.3.3. Berekening van V_{200} , V_{220} , V_{101} , en V_{211}	94
4.3.4. Berekening van energieniveaus en FS parameters	97
4.3.5. Conclusie	104
Summary: The Fermi surface of white tin	105
Referenties	109

Naast de gebruikelijke, komen in dit proefschrift de volgende afkortingen en eenheden voor:

Afkortingen

dHvA	: de Haas-van Alphen effect
FS	Fermi-oppervlak
BZ	Brillouinzone
BZB	: Brillouinzonegrens
NFE	: bijna-vrije-electronen model
RF	(radio-frequentie) Shoenberg-Stiles methode
GP	Gold en Priestley (1960)
G	Gantmakher (1963, 1964)
K	Khaikin (1962a)
W	Weisz (1966)
S	: dit proefschrift

Eenheden

golfvector (k)	: $k_0 = \frac{2\pi}{a} \approx 1,083 \times 10^8 \text{ cm}^{-1}$
energie (E)	: $\frac{\hbar^2 k_0^2}{2m} \approx 4,45 \text{ eV} \approx 0,326 \text{ Rydberg}$
dHvA frequentie (F)	: 10^7 Gauss
cyclotronmassa (m_c)	: $m = \text{massa van het vrije electron}$

1. HET DE HAAS VAN ALPHEN EFFECT

1.1. Het de Haas-van Alphen effect (dHvA) wordt toegepast om de vorm te bepalen van het Fermi-oppervlak (FS) van een metaalkristal.

De mogelijke toestanden van de 'vrije' electronen in een metaal worden gekarakteriseerd door hun golfvector \vec{k} ; o.m. is de energie E een functie van deze grootte. Het is dus mogelijk in de 'golfvectorruimte' oppervlakken van constante energie aan te geven. Volgens de verdelingswet van Fermi is er een oppervlak (het Fermi-oppervlak, overeenkomend met de Fermi-energie E_F), dat de grens vormt tussen de bezette en de niet-bezette toestanden in de \vec{k} -ruimte; de overgang vindt plaats in een schil met een dikte corresponderend met een energie van de orde van kT (k is de constante van Boltzmann, T de absolute temperatuur).

Een kristal wordt gekenmerkt door de regelmatige, zich periodiek herhalende rangschikking van de samenstellende atomen (c.q. ionen). De potentiële energie van de vrije electronen in het metaal heeft dezelfde periodiciteit. De vorm van het FS wordt bepaald door de potentiaal, en gebleken is, dat daarbij de periodiciteit belangrijker is dan de kwantitatieve waarde van de potentiaal (zie hoofdstuk 4).

De 'Fermi-zee', begrensd door het FS, kan opgevat worden als de grondtoestand van het electronensysteem, en het zijn de excitaties rond E_F uit deze grondtoestand, die als 'quasi-deeltjes' werkzaam zijn in tal van processen in metalen. Zo worden b.v. de soortelijke warmte en transporteffecten mede bepaald door de electronendichtheid en de dispersierelatie ($E = E(\vec{k})$) voor $E = E_F$, en daarmee door de vorm van het FS.

In dit inleidende hoofdstuk zullen we de theorie van het dHvA bespreken, en een methode om het effect te meten. In hoofdstuk 2 wordt de meetapparatuur beschreven, en in hoofdstuk 3 de meetresultaten. Hoofdstuk 4 geeft een interpretatie van de meetresultaten, aan de hand van het dan te bespreken 'bijna-vrije-electronen model'.

1.2. Eén-electron theorie

1.2.1. Van het dHvA, dat in 1930 in Leiden werd ontdekt, is voor het eerst door Onsager (1952) een algemene verklaring gegeven. We zullen hier de uitvoeriger uiteenzetting van Lifshitz en Kosevich (1955) volgen, die onafhankelijk van Onsager is opgesteld.

Volgens de klassieke mechanica zijn in een homogeen magneetveld $\vec{H} = (0, 0, H)$ de 'Poisson-haakjes' voor de gegeneraliseerde impuls \vec{P} van een electron:

$$\begin{aligned} [P_y, P_x] &= \frac{e}{c} H \\ [P_y, P_z] &= [P_x, P_z] = 0 \end{aligned} \quad (1.1)$$

in het Gauss-eenhedenstelsel (waarin de eenheid van de magnetische inductie B en die van H gelijk zijn); e is de lading van het electron, c de lichtsnelheid. Deze relaties gelden onafhankelijk van de relatie $E = E(\vec{P})$, en kunnen gecombineerd worden met de algemene plaats-impuls Poisson-haakjes:

$$[P_y, Q_y] = 1 \text{ enz.} \quad (1.2)$$

zodat voor de gegeneraliseerde plaatscoördinaat geldt:

$$Q_y = \frac{c}{eH} P_x \quad (1.3)$$

Op deze grootheden passen we de semi-klassieke kwantisatieregels toe:

$$\begin{aligned} \frac{1}{2\pi} \oint P_y dQ_y &= (n + \gamma) \hbar & n &= 0, 1, 2, \dots \\ & & 0 &\leq \gamma < 1 \end{aligned} \quad (1.4)$$

(\hbar is de gereduceerde constante van Planck), zodat:

$$\frac{c}{2\pi e \hbar H} \oint P_y dP_x = (n + \gamma) \quad (1.5)$$

Dit betekent het volgende. Zowel in de kristalroosterruimte als in de impulsruimte 'beweegt' het electron zich o.i.v. het externe magneetveld. Daar de Lorentzkracht geen arbeid verricht blijft de energie van het electron constant. Voorts blijft ook de impuls in de z -richting constant. De 'baan' van het electron in de impulsruimte is hierdoor gekarakteriseerd: het electron beweegt zich op de snijlijn van het platte vlak ($P_z = \text{constant}$) loodrecht op de z -as, met het oppervlak van constante energie ($E = \text{constant}$). De kwantisatieregels (1.4) geldt alleen als deze

kromme gesloten is; dan is $\oint P_y dP_x$ het omsloten oppervlak van de baan in de impulsruimte.

In de \vec{k} -ruimte ($\vec{k} = \vec{P}/\hbar$) is het omsloten oppervlak:

$$a = a(k_z, E) = (n + \gamma) \frac{2\pi e H}{\hbar c} \quad (1.6)$$

We hebben nu een impliciete relatie gevonden tussen de energie, het magneetveld, de component k_z van de golfvector in de z-richting, en het kwantumgetal n . Indien we ook nog de spin in aanmerking nemen, is de energie:

$$E = E_n(k_z, H) \pm \frac{1}{2} g \mu_B H \quad \text{met: } \mu_B = \frac{e\hbar}{2mc} \quad (1.7)$$

μ_B is het Bohr-magneton, m de massa van het electron, en g de Landé-splitsingsfactor.

Uit (1.6) volgt dat in de \vec{k} -ruimte alleen discrete banen mogelijk zijn. Het energieverschil tussen twee opeenvolgende banen (of 'Landau-niveaus') is:

$$\Delta E = \left(\frac{\partial a}{\partial E} \right)_{k_z}^{-1} \cdot \Delta a = \left(\frac{\partial a}{\partial E} \right)_{k_z}^{-1} \cdot \frac{2\pi e H}{\hbar c} = 2\mu_B^* H \quad (1.8a)$$

$$\text{met } \mu_B^* = \frac{e\hbar}{2m_c c} \quad (1.8b)$$

$$\text{en } m_c = \frac{\hbar^2}{2\pi} \left(\frac{\partial a}{\partial E} \right)_{k_z} \quad (1.8c)$$

m_c wordt, indien genomen bij $E = E_F$, de cyclotronmassa genoemd.

1.2.2. Om de invloed van deze kwantisatie op macroscopische grootheden te onderzoeken, moeten we de vrije energie per volume-eenheid berekenen:

$$\Omega = N E_F - \frac{kT}{V} \sum_s \ln \left[1 + \exp. \frac{E_F - E(s)}{kT} \right] \quad (1.9)$$

waarin $E(s)$ de energie van de toestand s (inclusief spin) is, N het totale aantal electronen per volume-eenheid, en V het volume; de sommering gaat over alle mogelijke toestanden van een individueel electron, waarvoor we de impliciete uitdrukking (1.7) gevonden hebben. Lifshitz en Kosevich vinden voor Ω een gecompliceerde uitdrukking, waarvan ons slechts één term interesseert, n.l. de oscillerende:

$$\mathfrak{Q}_2 = \frac{1}{2} C H^{3/2} \sum_{j=1}^{\infty} j^{-3/2} \left(\sinh \frac{j \pi^2 k T}{\mu_B^* H} \right)^{-1} \cdot \cos \frac{j \pi m c g}{2m} \cdot \cos j \left(\frac{2 \pi F}{H} - \beta \right) \quad (1.10a)$$

$$\text{met } C = \frac{2k}{\pi \sqrt{2\pi}} \left(\frac{e}{c \hbar} \right)^{3/2} \left| \frac{\partial^2 a}{\partial k_z^2} \right|_{a=A}^{-1/2} \quad (1.10b)$$

$$F = \frac{\hbar c}{e} A \quad (1.10c)$$

$$\beta = 2 \pi \gamma \pm \frac{\pi}{4} \quad (1.10d)$$

$$\left(\frac{\partial a}{\partial k_z} \right)_{E=E_F} = 0 \quad \text{voor } a = A \quad (1.10e)$$

Hierin is A dus een extremale doorsnede (zie verder) van het FS $\perp H$; het + resp. - teken in β treedt op indien het extremum een minimum dan wel een maximum is.

We kunnen ons voorstellen, dat bij een aangroeiend magneetveld de toegelaten banen in de golfvectorruimte groter worden, waarbij ook de vrije energie toeneemt, totdat een baan het FS 'passeert'. Door de dan optredende herverdeling van de electronen over de Landau-niveaus neemt de vrije energie af, om vervolgens weer aan te groeien, tot de volgende baan het FS passeert. De vrije energie is daarmee een periodieke functie van $1/H$ geworden. Dit proces vindt plaats voor alle doorsneden van het FS, dus bij elke k_z . Alleen de (met betrekking tot k_z) extremale doorsneden leveren echter een netto effect op, de andere compenseren elkaar.

$$\text{Indien } \frac{\pi^2 k T}{\mu_B^* H} \gg 1$$

$$\text{dan is } \sinh \cdot \frac{\pi^2 k T}{\mu_B^* H} \approx \frac{1}{2} \exp. \frac{\pi^2 k T}{\mu_B^* H} \gg 1 \quad (1.11)$$

en is van de som (1.10a) alleen de eerste term (de eerste harmonische) van betekenis, zodat:

$$\mathfrak{Q}_2 = C H^{3/2} \exp. \frac{-\pi^2 k T}{\mu_B^* H} \cdot \cos \frac{\pi m c g}{2m} \cdot \cos \left(\frac{2 \pi F}{H} - \beta \right) \quad (1.12)$$

nu zuiver periodiek in $1/H$ is.

De frequentie F verschaft ons informatie over het FS, n.l. de extreme doorsnede A ervan (zie (1.10c)). Wanneer het FS meerdere extreme doorsneden heeft, leveren deze elk hun eigen bijdrage tot Ω_2 .

De amplitude is aanmerkelijk gecompliceerder. Ten eerste is er de factor $\left| \frac{\partial^2 a}{\partial k_z^2} \right|_{a=A}^{-1/2}$, die samenhangt met de kromming van het FS in de

k_z -richting t.p.v. het extremum: hoe groter de kromming, d.w.z. hoe minder stationair de extreme doorsnede is, hoe kleiner de amplitude (voor een cilinder is deze factor ∞ , voor een bol $1/\sqrt{2}\pi$).

Vervolgens ontmoeten we de exponentiële 'dempingsfactor': indien $\mu_B^* H < kT$ passeren meerdere Landau-niveaus tegelijk het FS (op te vatten als een schil met een dikte, corresponderend met kT , terwijl de 'afstand' van de Landau-niveaus correspondeert met $2\mu_B^* H$), waardoor de periodieke variatie wordt afgerond tot een cosinus (de eerste harmonische), en wordt verkleind. Uit de temperatuurafhankelijkheid van de amplitude kan de cyclotronmassa m_c berekend worden.

De term $\cos \frac{m_c g}{2m}$ is de 'spinfactor', en wordt mede bepaald door de splitsingsfactor g , die voor electronen in een metaal niet gelijk aan twee hoeft te zijn (zie § 1.3).

1.3. Interacties

De Lifshitz-Kosevich theorie is een één-electron theorie, d.w.z. dat de interactie van de electronen met elkaar en met afwijkingen van het ideale rooster verwaarloosd worden. Op welke wijze deze interacties mee in beschouwing genomen kunnen worden, is nog niet geheel duidelijk. We zullen enkele mogelijkheden noemen.

Ten eerste hebben we al vermeld dat de spin-splitsingsfactor g niet twee hoeft te zijn. De zeer hoge waarden die men in bismuth en zink voor enkele delen van het FS voor g heeft gevonden, zijn het gevolg van spin-baan koppeling (zie b.v. Cohen en Blount (1960)).

Voorts kunnen we de relaxatietijd τ van het electron in de toestand, gekarakteriseerd door de extreme baan op het FS beschouwen. Dingle (1952) heeft aangetoond dat de verbreding van de Landau-niveaus als gevolg van de eindige duur van de toestand een extra dempingsfactor $\exp. \frac{-\pi^2 k T_D}{\mu_B^* H}$ ten gevolge heeft, met $T_D = \hbar / \pi k \tau$ (de 'Dingle-temperatuur').

De relaxatietijd τ blijkt niet vereenzelvigd te kunnen worden met de botsingstijd, die optreedt in transportverschijnselen (zie Shoenberg (1952), Zak (1964), Williamson, Foner en Smith (1964)). T_D kan berekend worden uit de veldafhankelijkheid van de amplitude van het dHvA, indien m_c reeds uit de temperatuurafhankelijkheid gevonden is.

De experimenteel te meten waarde van de cyclotronmassa m_c wordt niet alleen bepaald door de dispersierelatie $E = E(\vec{k})$, zoals die uit de één-electron theorie kan worden afgeleid, maar ook door electron-electron en vooral door electron-fonon interactie (zie Bychkov en Gorkov (1961), Ashcroft en Wilkins (1965), Wilkins en Woo (1965), Larson en Gordon (1965)).

Ook de fase β van het dHvA blijkt zeer gevoelig te zijn voor interacties (zie Luttinger (1961)).

Tenslotte vermelden we het verschijnsel van 'magnetische interactie': de onderlinge beïnvloeding van verschillende delen van het FS via de magnetisatie. Pippard (1963) heeft een eenvoudige theorie opgesteld, door in de formule van Lifshitz en Kosevich het magneetveld H te vervangen door de inductie B . Inmiddels is gebleken, dat deze theorie niet voldoende is om de magnetische interactie (vnl. onderzocht aan beryllium) te beschrijven. Voor een diepgaande discussie en referenties verwijzen we naar Condon (1966). Glasser (1966) meent dat de waargenomen verschijnselen, die men in verband brengt met magnetische interactie, ook verklaard kunnen worden uit de periodieke variatie van de Fermi-energie E_F (ook nu als functie van $1/H$). In de Lifshitz-Kosevich theorie wordt aangenomen dat deze variatie verwaarloosbaar is, maar een meting van Whitten en Piccini (1966) aan zink laat zien dat deze variatie van de orde van het energieverval tussen twee Landau-niveaus kan zijn.

Hoewel de theorie van de interacties nog verre van voltooid is, staat wel vast dat deze geen invloed hebben op de verhouding tussen de extreme doorsnede A van het FS, en de frequentie F van het dHvA ($(1.10c)$). De invloed beperkt zich tot de amplitude van dit verschijnsel, en tot het optreden van hogere harmonischen, somfrequenties, etc.

1.4. Shoenberg-Stiles methode (RF)

1.4.1. In § 1.2 hebben we gezien dat de vrije energie \mathcal{Q} een periodiek met $1/H$ variërende term bevat; dit impliceert dat alle macroscopische grootheden, die van de vrije energie afgeleid kunnen worden, hetzelfde periodieke verschijnsel vertonen. Een daarvan is de magnetische

$M = -\frac{\partial \Omega}{\partial H}$, en alle periodiek variërende verschijnselen, die met de magnetisatie samenhangen noemt men 'de Haas-van Alphen effect'; de analoge periodieke variatie van de elektrische weerstand wordt het 'Shubnikov-de Haas effect' genoemd.

Onze meetmethode, het eerst toegepast door Shoenberg en Stiles (1963) duiden we aan met RF (radio-frequentie). In dit geval bevindt het kristal zich niet alleen in het kwantiserende uitwendige veld H_0 , maar bovendien in een klein wisselveld $h \cos \omega t$, verkregen d.m.v. een spoeltje om het kristal.

Op een tweede spoeltje wordt een spanning geïnduceerd, vnl. met de grondfrequentie ω . Dank zij de niet-lineaire magnetisatie treden er bovendien hogere harmonischen op. Door de tweede harmonische (met frequentie 2ω) te detecteren wordt in het meetresultaat de lineaire magnetisatie geëlimineerd. Daarom is het gunstig de tweede harmonische te meten, hoewel de amplitude kleiner is dan die van de grondfrequentie.

Bij een uitwendig veld:

$$H = H_0 + h \cos \omega t \quad \text{met } h \ll H_0 \quad (1.13)$$

kunnen we de magnetisatie ontwikkelen naar h :

$$M = M(H) = M(H_0) + h \cos \omega t \cdot \left(\frac{\partial M}{\partial H}\right)_{H_0} + \frac{1}{2} h^2 \cos^2 \omega t \cdot \left(\frac{\partial^2 M}{\partial H^2}\right)_{H_0} + \dots \quad (1.14)$$

De e.m.k. op het oppikspoeltje is $S \frac{\partial B}{\partial t}$ (S is het totale effectieve oppervlak van het spoeltje), en m.b.v. $B = H + 4\pi M$ leiden we af:

$$\frac{\partial B}{\partial t} = -h\omega \sin \omega t \cdot \left(1 + 4\pi \left(\frac{\partial M}{\partial H}\right)_{H_0}\right) - 2\pi\omega h^2 \sin 2\omega t \cdot \left(\frac{\partial^2 M}{\partial H^2}\right)_{H_0} + \dots \quad (1.15)$$

Nu is alleen het oscillerende deel van M niet-lineair van H afhankelijk; voor de overige delen van M is $\left(\frac{\partial^2 M}{\partial H^2}\right)_{H_0} = 0$. Het signaal met frequentie 2ω is dus geheel van het dHvA afkomstig. In de vrije energie Ω_2 varieert de factor $\cos\left(\frac{2\pi F}{H} - \beta\right)$ veel sneller dan de overige factoren; de laatsten kunnen daarom bij het differentiëren als veldonafhankelijk beschouwd worden. Dus is:

$$\frac{\partial^2 M}{\partial H^2} = -\frac{\partial^3 \Omega_2}{\partial H^3} = 4\pi^3 C T H^{-9/2} F^3 \cdot \sum_{j=1}^{\infty} j^{3/2} \left[\sinh \frac{j\pi^2 k(T+T_D)}{\mu_B^* H} \right]^{-1} \cdot \cos \frac{j\pi m c g}{2m} \cdot \sin j \left(\frac{2\pi F}{H} - \beta \right) \quad (1.16)$$

1.4.2. Het effectieve oppervlak S van het oppikspoeltje wordt bepaald door de indringdiepte δ van het wisselveld in het preparaat. Deze hangt samen met de sweep-frequentie ω , en met het elektrische geleidingsvermogen σ :

$$\delta = c(2\pi\sigma\omega)^{-1/2} \quad (1.17)$$

De totale amplitude van het effect is dus evenredig met $\omega^{1/2}$ (zie (1.15)).

σ hangt op een gecompliceerde manier van H af; i.h.a. is bij lage veldsterkte $\sigma \propto H^{-2}$, terwijl bij toenemend veld veelal verzadiging optreedt (vgl. §3.3.2). In het eerste geval is de amplitude dus evenredig met $H^{-7/2}$, en met de exponentiële dempingsfactor. Hieruit volgt dat er een optimale veldsterkte H_{opt} bestaat, waarbij de amplitude maximaal is. We vinden (in de eerste-harmonische benadering van (1.12)):

$$H_{\text{opt}} = 4,3 \times 10^4 (T + T_D) \frac{m_c}{m} \text{ Gauss} \quad (1.18)$$

In het laatste geval is de amplitude evenredig met $H^{-9/2}$, zodat:

$$H_{\text{opt}} = 3,3 \times 10^4 (T + T_D) \frac{m_c}{m} \text{ Gauss} \quad (1.19)$$

De gemeten amplitude is voorts afhankelijk van de oriëntatie van de meetspoeltjes t.o.v. het kwantiserende veld H_0 (vgl. Shoenberg en Stiles (1964)).

Tenslotte is het effect evenredig met h^2 . Het is dus gunstig het sweepveld h zo groot mogelijk te kiezen, maar niet groter dan de periode $\Delta H = H^2/F$ van het dHvA als functie van H ; voor de grootste dHvA frequentie F die wij in tin meten, is bij 30 kG: $\Delta H = 10$ Gauss, zodat h niet meer dan ongeveer 6 Gauss moet zijn. Voor de lagere dHvA frequenties kan een groter sweepveld toegepast worden. Shoenberg en Stiles (1964) en Goldstein, Williamson en Foner (1965) hebben geanalyseerd wat het optimale sweepveld is; dit blijkt $h = 0,6\Delta H$ te zijn. We zijn steeds onder deze waarde gebleven, zodat de evenredigheid van de amplitude met h^2 steeds een goede benadering is.

In onze meetopstelling hebben we een kristal met diameter 3 mm, een oppikspoeltje van 100 wikkelingen, een effectief oppervlak S van 10 mm^2 een sweepveld van 5 Gauss voor hoge en 50 Gauss voor lage F , en een H_0 tussen 25 en 35 kG; de te verwachten signalen zijn nu van de orde van 10^{-6} à 10^{-9} Volt. Om deze te kunnen meten is dus een apparatuur nodig met een ruis van 10^{-10} Volt of minder, en een versterking van ongeveer 10^8 .

1.4.3. We merken nog op, dat het in het geheel niet zeker is, of de oscillerende spanning op het oppikspoeltje inderdaad rechtstreeks van het

dHvA afkomstig is, zoals we verondersteld hebben. Ook de elektrische weerstand vertoont immers als functie van het magneetveld oscillaties (d.i. het Shubnikov-de Haas effect), en deze resulteren in een oscillerende indringdiepte van het RF veld in het preparaat (zie (1.17)). Voorzover we alleen geïnteresseerd zijn in de frequentie F , is dit probleem van geen belang, omdat dHvA en Shubnikov-de Haas effect precies dezelfde frequentie hebben.

In het algemeen neemt men aan met het dHvA van doen te hebben (vgl. Shoenberg en Stiles (1964)); in het geval van tin is dit moeilijk te beoordelen, omdat we geen betrouwbare gegevens hebben van de magnetoweerstand als functie van het magneetveld en de oriëntatie, behalve dat deze bijzonder anisotroop is. Bordoloi c.s. (1965) vermelden - zonder details - metingen van het Shubnikov-de Haas effect in wit tin, met amplitudes, veel groter dan uit de theorie afgeleid kan worden.

Voegen we deze onzekerheid bij de al eerder vermelde onzekerheden over de amplitude van het effect, dan wordt het een dubieuze zaak uit de amplitude conclusies te trekken, m.n. t.a.v. de cyclotronmassa en de Dingle-temperatuur (vgl. Goldstein, Williamson en Foner (1965)). Daar komt bij dat er in tin steeds zoveel dHvA frequenties tegelijk optreden, dat het i.h.a. bijzonder moeilijk is er één voldoende te isoleren, om deze metingen te kunnen doen. We hebben dan ook bij ons onderzoek geheel afgezien van de meting van de cyclotronmassa en de Dingle-temperatuur.

2. MEETAPPARATUUR

2.1. In fig. 2.1 geven we het blokschema van onze apparatuur. Op het preparaat zijn twee spoeltjes gewikkeld. De 10 kHz oscillator veroorzaakt een wisselveld in het primaire spoeltje. Het secundaire spoeltje is in een Hartshornbrug opgenomen, waar de 10 kHz spanning gecompenseerd wordt, terwijl de 20 kHz spanning overblijft. Deze wordt selectief versterkt, en gedetecteerd door een lock-in versterker; het ultra-laag-frequente dHvA signaal wordt nu opnieuw selectief versterkt, en geregistreerd op een X-Y recorder.

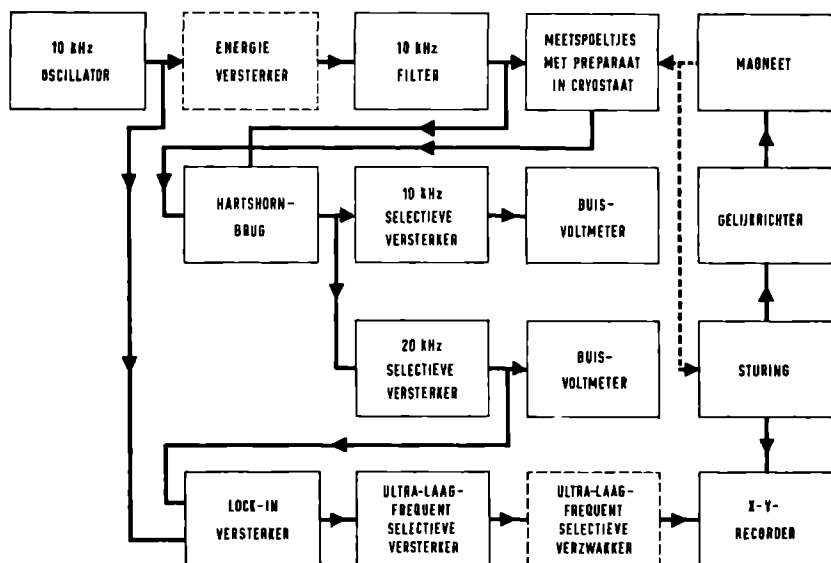


Fig.2.1. Blokschema van de RF apparatuur.

In deze opstelling wordt het magneetveld zo geregeld, dat de veldsterkte omgekeerd evenredig met de tijd varieert. Het dHvA signaal is daarmee zuiver periodiek (met veranderlijke amplitude) in de tijd geworden, waardoor laatstgenoemde selectieve versterking mogelijk

wordt.

De X-uitslag van de X-Y recorder is eveneens omgekeerd evenredig met H , zodat uit het aantal mm per periode de dHvA frequentie F rechtstreeks berekend kan worden.

2.2. RF apparatuur

2.2.1. De 10 kHz oscillator geeft een uitgangsspanning van ongeveer 6 Volt, en een 20 kHz spanning van minder dan 10^{-3} maal deze waarde. Bij de meting van lage dHvA frequenties ($F \lesssim 10^7$ G) werd de energieversterker tussengeschakeld, die (bij gelijke belasting) de spanning tien maal vergroot.

Het 10 kHz filter (zie fig. 2.2) zwakt het nog aanwezige 20 kHz signaal, in verhouding tot het 10 kHz signaal, nog eens met een factor 10^4 af, zodat het sweepveld minder dan 10^{-7} tweede harmonische bevat.

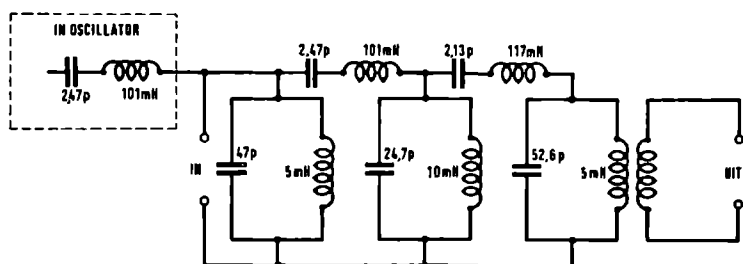


Fig.2.2. 10 kHz filter.

Het primaire spoeltje heeft ruim dertig windingen, met een diameter van ruim 3 mm, en een lengte van ongeveer 2 mm. Zonder energieversterker is de stroom ongeveer 25 mA, het sweepveld dus $h \approx 5$ G; met energieversterker is de stroom 250 mA, het sweepveld $h \approx 50$ G.

Het secundaire spoeltje maakt deel uit van een Hartshornbrug, waar de 10 kHz component in principe geheel gecompenseerd kan worden; in feite blijkt dit niet nodig te zijn, en is een reductie van het 10 kHz signaal tot $\approx 1\%$ voldoende om de 20 kHz versterker niet te oversturen. Dit is een plezierige omstandigheid, omdat de 10 kHz spanning van het secundaire spoeltje veldafhankelijk is, en, wanneer de compensatie vollediger had moeten zijn, deze voortdurend bijgesteld had moeten worden, hetgeen nu niet nodig is.

Het schema van de Hartshornbrug (fig. 2.3) spreekt verder voor zichzelf. De compensatie wordt gecontroleerd met een buisvoltmeter, na versterking door een selectieve 10 kHz versterker (zie fig. 2.4).

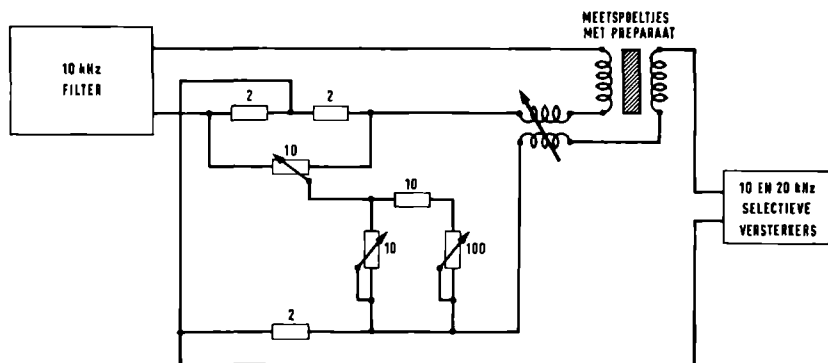


Fig.2.3. Hartshornbrug.

2.2.2. Het 20 kHz signaal, dat gemoduleerd is door het dHvA, wordt versterkt door een selectieve versterker (fig. 2.4), waarvan de bandbreedte 1 kHz is, en die het 10 kHz signaal t.o.v. het 20 kHz signaal 1000 maal verzwakt. Bij 20 kHz is de versterkingsfactor 800.

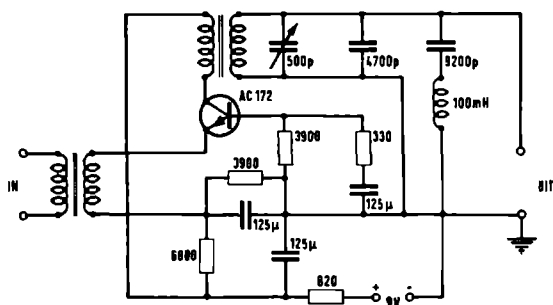


Fig.2.4. 20 kHz versterker; de 10 kHz versterker is analoog.

De transistor AC 172 heeft een bijzonder lage ruis, n.l. 3 db boven de fundamentele ruis, mits de ingangsimpedantie $\approx 1000\Omega$ bedraagt. Deze verkrijgen we d.m.v. de ingangstransformator, die (bij 20 kHz) een primaire impedantie van 1Ω , en een secundaire van 1000Ω heeft.

De lock-in versterker (E.M.C., model RJB) heeft een ingebouwde frequentieverdubbelaar, zodat als referentiespanning de 10 kHz uit-

gangspanning van de oscillator kan dienen. In zijn gevoeligste stand geeft de versterker een gedetecteerd uitgangssignaal van 0,8 Volt, bij een ingangssignaal van $30 \mu\text{V}$.

2.2.3. Het uitgangssignaal van de lock-in versterker is een ultra-laag-frequente spanning van de orde van 0,01 - 0,1 V, met de frequentie van het dHvA. Intin worden steeds meerdere frequenties tegelijk gemeten. Om deze te scheiden maken we gebruik van twee ultra-laag-frequente selectieve versterkers achter elkaar. De topfrequentie daarvan is regelbaar tussen 0,25 en 2,5 Hz. De frequentie van het te meten signaal wordt binnen dit gebied gebracht door de snelheid te regelen, waarmee het magneetveld gevarieerd wordt (zie § 2.3). Het schema van de selectieve versterkers is gegeven in fig. 2.5, en de frequentie karakteristiek in fig. 2.6.

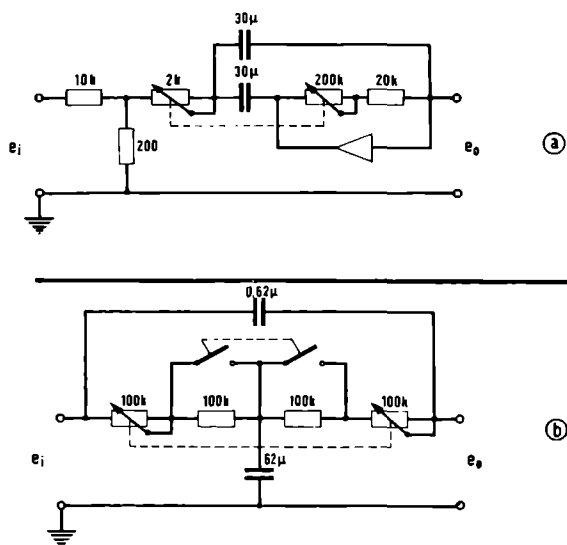


Fig.2.5. Ultra-laag-frequent selectieve versterker, resp. verzwakker.
(de driehoek in fig.2.5a stelt een operationele versterker voor).

De schakeling is van dien aard, dat de selectieve versterkers relatief veel ruis geven (enkele mV op de uitgang, onafhankelijk van de ingangsspanning). Daarom wordt de uitgangsspanning van de lock-in versterker eerst 100 maal versterkt, eveneens met een teruggekoppelde operationele versterker.

De kwaliteitsfactor Q van de twee selectieve versterkers achter elkaar is ongeveer 10, d.w.z. dat voor het 'inslingeren' ongeveer 10 perio-

des voldoende zijn. We hebben ernaar gestreefd bij onze metingen steeds tussen 50 en 100 periodes te registreren. Het gebruik van de selectieve versterkers is mogelijk doordat dan de amplitude weinig (i.c. minder dan een factor twee, zie § 1.4.2) varieert.

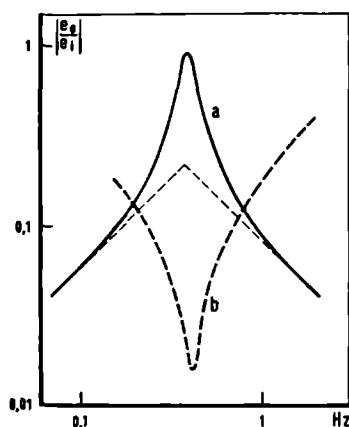


Fig. 2.6. Frequentiekaracteristieken van de selectieve versterker en verzwakker uit fig. 2.5.
(de dunne streeplijnen geven het verloop aan van een exacte differentiator, resp. integrator)

Wanneer de te meten dHvA oscillatie veel zwakker is dan een andere, waarvan de frequentie weinig van de eerste verschilt, heeft het soms voordeel een selectieve verzwakker te gebruiken. Het schema en de frequentiekaracteristiek daarvan zijn weergegeven in fig. 2.5 en 2.6; het frequentiebereik ligt tussen 0,1 en 2,5 Hz.

2.2.4. Het is gebleken, dat bij onze metingen de ruis bepaald wordt door de wisselwerking tussen de instabiliteit van het magnetveld en het dHvA signaal. De theoretische fundamentele ruis $(4kTR\Delta\nu)^{\frac{1}{2}}$ van het systeem wordt bepaald door de ingangsweerstand ($R \approx 4\Omega$) bij kamertemperatuur van de 20 kHz versterker, en de bandbreedte ($\Delta\nu = 0,1$ Hz) van de ultra-laag-frequent versterker, en bedraagt $\approx 10^{-10}$ V. Met uitgeschakeld magnetveld is de feitelijke ruis niet meer dan een factor drie boven deze waarde.

Wanneer het magnetveld werd ingeschakeld, bleek de ruis echter nog een factor 10 à 100 groter te worden. Deze factor bleek afhankelijk te zijn van de oriëntatie van het veld t.o.v. het kristal, en het verschijnsel werd alleen waargenomen beneden 4,2°K (niet bij vloeibare-stik-

stof- of kamertemperatuur).

Om dit nader te onderzoeken hebben we bij een magneetveld van ongeveer 33 kG de ruis gemeten op de uitgang van de lock-in versterker, bij een RC tijd van 0,03 sec (dus bij de relatief grote bandbreedte van 5 Hz), met het veld ongeveer langs de $[001]$ as van het kristal. Zonder het magneetveld bedroeg de ruis (omgerekend naar de ingang van de 20 kHz versterker) $2 \times 10^{-9} \text{ V}$, in het veld $\Delta E = 2 \times 10^{-7} \text{ V}$. Voorts hebben we het dHvA signaal gemeten, ook nu zonder ultra-laag-frequent versterking. Dit signaal werd gedomineerd door de G_1 oscillatie met een dHvA frequentie $F \approx 1,1 \times 10^8 \text{ G}$ (vgl. hoofdstuk 3), en een amplitude $E_0 \approx 2 \times 10^{-6} \text{ V}$. De spanning op de ingang van de 20 kHz versterker kan dus weergegeven worden als:

$$E = E_0 \sin \frac{2\pi F}{H} \quad (2.1)$$

zodat:

$$\frac{\partial E}{\partial H} = -E_0 \cdot \frac{2\pi F}{H^2} \cos \frac{2\pi F}{H} \approx -1,5 \times 10^{-6} \cos \frac{2\pi F}{H} \text{ VG}^{-1} \quad (2.2)$$

Hieruit volgt voor de ruis ΔE , uitgedrukt in de veldruis ΔH :

$$\Delta E = \frac{\partial E}{\partial H} \Delta H \approx 1,5 \times 10^{-6} \Delta H \approx 2 \times 10^{-7} \text{ V} \quad (2.3)$$

zodat $\Delta H \approx 0,1 \text{ G}$.

Deze veldruis kan op twee manieren veroorzaakt worden. Ten eerste is de instabiliteit van het veld van de orde 10^{-5} , overeenkomend met 0,3 G in het door ons beschouwde geval. Ten tweede is er de inhomogeniteit van het veld: geschat wordt dat een trilling van het preparaat met een amplitude van ongeveer 0,3 mm eveneens tot een effectieve veldvariatie van 0,3 G leidt.

In het boven besproken geval is de ruis $\approx 2 \times 10^{-7} \text{ V}$; bij de meeste veldoriëntaties is de ruis kleiner. Hierdoor, en door de selectiviteit van de ultra-laag-frequent versterkers, kunnen veelal signalen van $\approx 10^{-8} \text{ V}$ nog wel van de ruis onderscheiden worden.

2.3. Het magneetveld

2.3.1. Het magneetveld wordt verkregen in een watergekoelde Oerlikon-magneet (type C₂), die met konische ferro-cobalt poolschoenen bij een afstand van 25 mm een maximaal veld van 35 kG geeft, bij een magneetstroom van 210 A en een spanning van 140 V.

De magneet is draaibaar om een verticale as m.b.v. een motor waarvan de draaisnelheid regelbaar is, terwijl de draaiing op een recorder

geregistreerd kan worden m.b.v. een meedraaiende potentiometer.

Het veld is homogeen tot 10^{-4} over 1,5 mm van het centrum (volgens opgave van de fabrikant).

2.3.2. De magneetstroom wordt geleverd door een Standard Electric siliciumgelijkrichter, die bij 210 A een vermogen van 40 kW kan afgeven. De gelijkrichter is bij een constante stroomsterkte tot op 10^{-5} stabiel. Deze stabiliteit werd in de oorspronkelijke uitvoering van het apparaat bereikt, door de spanning op een shunt (in serie met de belasting) te vergelijken met een stuurspanning, en het verschil d.m.v. een Brown-versterker terug te koppelen. De versterker bekrachtigt een motor, die de potentiometer bedient, welke de stroomsterkte regelt.

We hebben dit systeem, dat dus *stroom*-gestabiliseerd was, zo gewijzigd, dat het *veld*-gestabiliseerd werd (zie fig. 2.7). De ingangspanning van de Brown-versterker is nu het verschil tussen de stuurspanning en de uitgangspanning van de fluxmeter. In de aanvankelijke opzet was de stroom, nu is het magneetveld evenredig met de stuurspanning. Door nu de stuurspanning omgekeerd evenredig met de tijd te veranderen, varieert ook de magneetveldsterkte omgekeerd evenredig met de tijd; door het niet-lineaire verband tussen de magneetstroom en het veld in een ijzermagneet was dit in de oorspronkelijke opzet niet mogelijk.

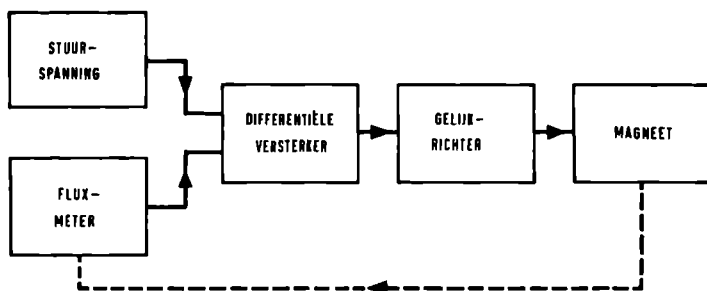


Fig.2.7. Blokschema van de magneetsturing.

De Brown-versterker is een typische gelijkspanningsversterker; om een goede frequentiearakteristiek van de rondversterking te verkrijgen is het nodig nog een parallelversterker voor hogere frequenties te introduceren. De rondversterking bij gelijkspanning wordt begrensd door de aanspreekgevoeligheid van de Brown-versterker die de neiging vertoont door 50 Hz 'brom' overstuurd te worden.

De 'error', d.i. de uitgangspanning van de differentiële versterker, wordt gecontroleerd door middel van een voltmeter.

2.3.3. Het schema van de fluxmeter vindt men in fig. 2.8. Tussen de polen van de magneet bevindt zich een oppikspoel, waarop de spanning evenredig is met $\partial B/\partial t$ (B is de magnetische inductie). Deze wordt versterkt door de ruisarme galvanometerversterker, vervolgens geïntegreerd, en daarna via een RC netwerk gedifferentieerd en teruggekoppeld.

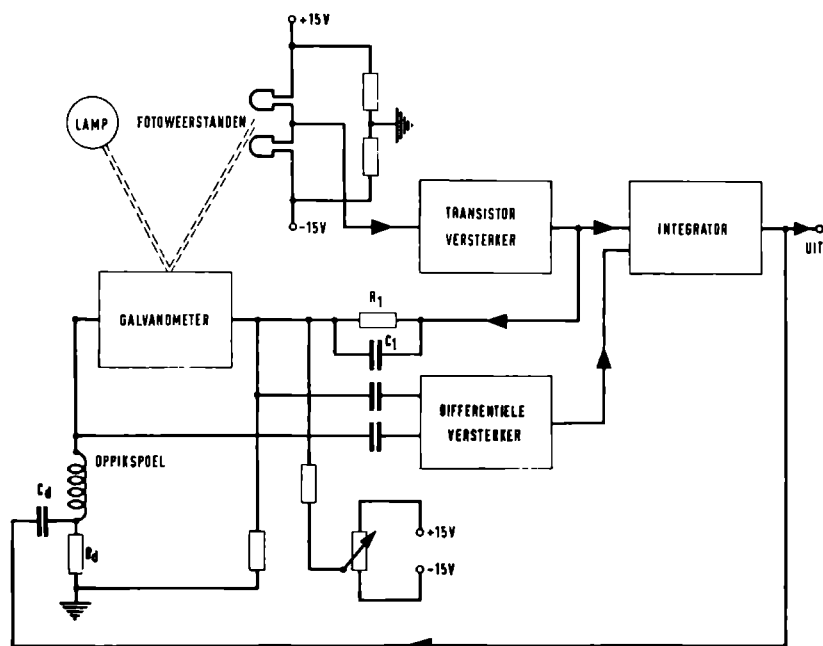


Fig.2.8. Fluxmeter.

Om een goede frequentiearakteristiek te verkrijgen is parallel aan de galvanometerversterker een versterker voor hogere frequenties aangebracht. Mededoor het filter R_1C_1 heeft de galvanometerversterker een karakteristiek, weer te geven door $A_1 (1 + j\omega\tau_i)^{-1}$; de integrator heeft als karakteristiek $A_2 (1 + j\omega\tau_i)/j\omega\tau_i$ (met dezelfde RC tijd τ_i), zodat de frequentiearakteristiek van de gehele fluxmeter die van een exacte integrator dicht benadert.

De galvanometer is een Kipp A53, de terugkoppelcondensator $C_d = 20 \mu F$ (merk: Leclanché) heeft een zeer hoge lekweerstand ($10^{12} \Omega$). Met $R_d = 13,5 \Omega$ is $\tau_d = 2,7 \times 10^{-4}$ sec. Het oppikspoeltje heeft een oppervlak $S = 2,3 \text{ cm}^2$ en bestaat uit $N = 30$ wikkelingen. De uitgangsspanning van de fluxmeter is nu $V = NBS/\tau_d$, bij het maximale veld $B = 35 \text{ kG}$ is $V = 90 \text{ Volt}$.

The diagram shows a control system for a motor. A 90V AC source is connected to a network of resistors and capacitors. A feedback loop is formed by a capacitor $C_2 = 1\mu$ and a variable resistor. The output of this network is connected to a motor, labeled 'MOTOR - VERTRAGINGS KAST'. The motor's output is measured by a 'FLUXMETER' and a 'V_U' (voltage) sensor. The voltage sensor is connected to a differential amplifier, labeled 'DIFFERENTIËLE VERSTERKER'. The amplifier's output is connected to a 'BELLRICHTER' (bell-shaped output). The amplifier also receives input from a '540k' resistor and a '1k' resistor. The output of the amplifier is connected to an 'X-Y-RECORDER'.

minimale X-uitslag van de X-Y recorder. Uit (2.4) volgt:

$$\Delta \left(\frac{1}{H} \right) = \frac{1}{H_{\min}} - \frac{1}{H_{\max}} = A \frac{10^4 (R_2 + R_3)}{E R_2 R_3} \quad (2.5)$$

$\Delta(1/H)$ (onafhankelijk van de waarde van R_1) wordt zo gekozen, dat er 50 à 100 periodes van het te meten dIIVa signaal op het papier verschijnen. M.b.v. R_1 kan het maximale veld op 35 kG ingesteld worden.

Het grootste toegepaste veldgebied was ongeveer 15 kG, dat in minimaal twee minuten doorlopen werd, de kleinste veldvariatie was ongeveer 1,5 kG, in maximaal 10 minuten.

We hebben het systeem, weergegeven in fig. 2.7, in zijn geheel gecalibreerd, door de X-uitslag van de X-Y recorder te iken m.b.v. de fluxmeter, en deze m.b.v. een proton-resonantie apparaat. De bereikte nauwkeurigheid van de calibratie was 0,5%.

2.4. Cryostaat en preparaten

2.4.1. We hebben gebruik gemaakt van een metalen 'staart-cryostaat' (fabrikaat: Oxford Instruments). De staart heeft een uitwendige diameter van 17 mm, en een inwendige van 8 mm.

Het secundaire meetspoeltje, bestaande uit ongeveer 100 wikkelingen, bevindt zich direct op het kristal; het primaire spoeltje, bestaande uit ongeveer 30 windingen, is om het secundaire gewikkeld. Het geheel wordt met araldiet bevestigd aan een 6 mm dik messing staafje, dat in het wijde gedeelte van de cryostaat aan een nieuwzilveren buis hangt; deze is op zijn beurt bevestigd aan het deksel van de cryostaat.

Op het messingstaafje zijn op twee plaatsen kleine 'vinnen' bevestigd, die maken dat het t.o.v. de cryostaat niet kan trillen, en goed gecentreerd is.

De toevoerdraden naar de meetspoeltjes (0,05 mm geëmailleerd koperdraad, buiten het magneetveld overgaand in 0,2 mm geëmailleerd koperdraad) zijn zorgvuldig vertwijnd; de resp. toevoerdraden van de primaire en de secundaire meetspoel worden zoveel mogelijk ruimtelijk gescheiden gehouden.

De temperatuur van het vloeibare-helium bad werd tijdens de metingen zo laag mogelijk gehouden, m.b.v. een Galileo helium pomp.

2.4.2. Het tin is van 'high purity' kwaliteit, met een door de fabrikant (Cominco) opgegeven onzuiverheid van maximaal 10^{-6} . Een meting van de weerstandsverhouding bij kamertemperatuur en 4,2°K leverde $\approx 2,5 \times 10^4$ op.

De kristallen werden gemaakt d.m.v. de Czochralski methode. De vorm van een cilindertje, met diameter 3 mm en lengte 3 mm werd verkregen m.b.v. een Agietron vonkerosie apparaat.

De kristaloriëntatie werd bepaald via de Laue-back-reflection methode. Hiermee kon de oriëntatie van de normaal op het horizontale vlak, waarin we het magneetveld varieerden, t.o.v. de kristalassen bepaald worden. We bereikten daarbij een nauwkeurigheid van 2° .

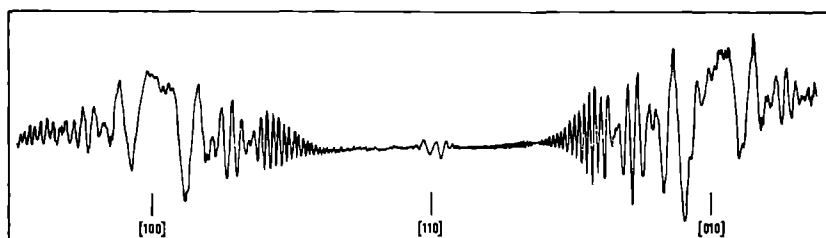


Fig.2.10. Voorbeeld van een draaidiagram.
De cilinderas van het preparaat staat langs $[110]$.

In het horizontale vlak werd de oriëntatie t.o.v. de kristalassen nauwkeuriger (tot op $0,5^\circ$) bepaald uit de symmetrie in 'draaidiagrammen' (zie fig. 2.10). Daarbij wordt bij een constant veld de magneet met constante snelheid rondgedraaid, en de draaiing wordt als X-uitslag op de X-Y recorder geregistreerd. De Y-uitslag is de uitgang van de lock-in versterker. Het nu geregistreerde signaal is een weergave van het faseverloop als functie van de hoek van de som van de verschillende dHvA oscillaties. Wanneer het draaidiagram door slechts één groep oscillaties wordt bepaald (d.w.z. dat de extremale doorsneden van één deel van het FS domineren) kan uit het draaidiagram de variatie van de dHvA frequentie als functie van de hoek worden afgeleid, met een aanmerkelijk grotere precisie, dan bereikt wordt m.b.v. directe frequentiemetingen (vgl. b.v. Shoenberg, Stiles (1964)). In tin treden steeds meerdere dHvA oscillaties tegelijk op, zodat wij de draaidiagrammen niet op deze manier konden toepassen.

Ik ben de heer J.A.M. van Huet dank verschuldigd voor het bouwen van de meeste in dit hoofdstuk beschreven apparatuur, de heren Ir. L.W.M. Schreurs en G. van der Meent voor het maken en oriënteren van de preparaten, en de heren W.G. Tubbing en W.T.A. van Aernsbergen voor de dagelijkse assistentie.

3. MEETRESULTATEN

Dit hoofdstuk bevat een gedetailleerd verslag van onze metingen. We beginnen met een algemeen overzicht van onze resultaten, die we tevens vergelijken met vroegere metingen van het de Haas-van Alphen effect in wit tin (§ 3.1).

Vervolgens bespreken we de metingen meer in detail, en construeren we enkele delen van het Fermi-oppervlak, voorzover dat mogelijk is zonder van een model uit te gaan (§ 3.2).

We eindigen dit hoofdstuk met een kort overzicht van de meetresultaten van anderen, betreffende de geometrie van het FS van tin (§ 3.3).

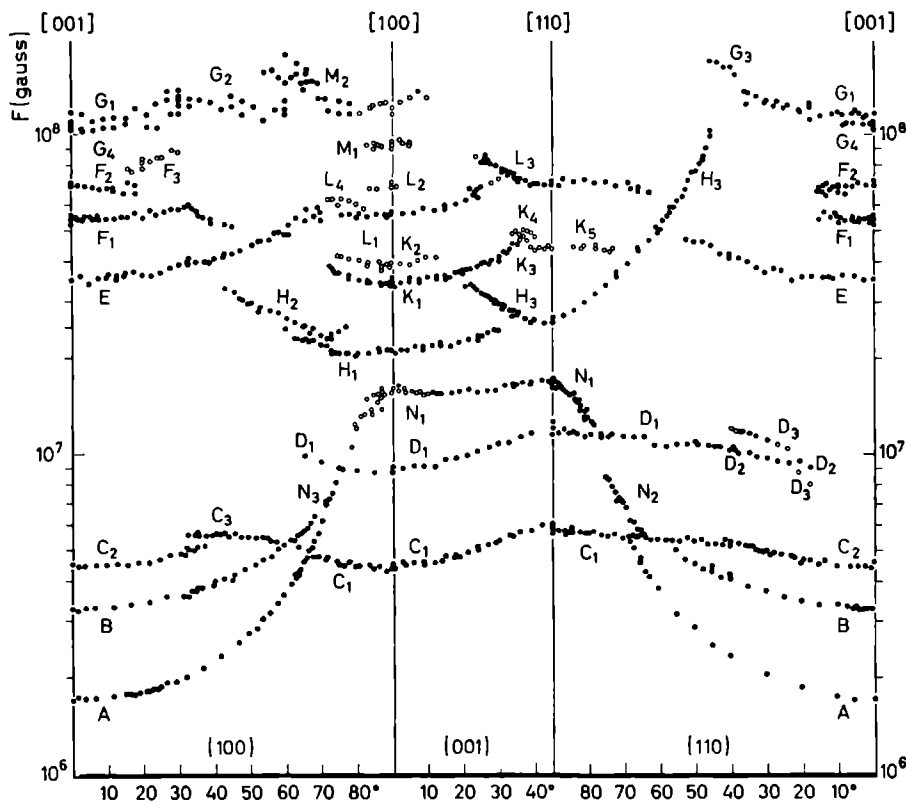
In dit proefschrift wordt als eenheid voor de dHvA frequentie F gekozen: 10^7 Gauss.

3.1. Algemeen overzicht

3.1.1. We hebben metingen verricht in de drie voornaamste symmetrievlakken in wit tin, het (100), het (110), en het (001) vlak (vgl. § 4.1.1; we maken in dit hoofdstuk i.h.a. geen onderscheid tussen equivalente assen en vlakken, zoals (100) en (010)). In elk vlak werden metingen gedaan aan twee kristallen, terwijl telkens één kristal een keer opnieuw gemonteerd werd; in totaal dus zes kristallen en negen 'montages'. De kristallen worden aangegeven met een cijfer, eventueel voorzien van een ster, indien een tweede montage bedoeld wordt. Bij de kristallen 5, 5*, en 10 was het magneetveld in het (001) vlak georiënteerd, bij 6, 7 en 7* in (110), en bij 8, 8*, en 11 in (100).

In § 2.4.2 hebben we als waarschijnlijke fout in de bepaling van de oriëntatie van het kristal aangegeven: 2° voor de oriëntatie van de normaal op het horizontale vlak, waarin gemeten wordt, en $0,5^\circ$ voor de oriëntatie in dit vlak. Vooruitlopend op een nadere discussie in § 3.2 willen we vast opmerken, dat we vrijwel geen systematische verschillen gevonden hebben in de metingen bij verschillende montages - althans voorzover het frequentiemetingen betreft. Wel bestaan er ver-

3.1.2. In fig. 3.1 zijn al onze frequentiemetingen weergegeven, als functie van de oriëntatie van het magneetveld t.o.v. de kristallografische assen. Uit de grafiek blijkt wel hoe gecompliceerd het FS van wittin moet zijn: we hebben niet minder dan 33 'takken' onderscheiden. Daarmee is uiteraard niet gesteld dat het FS ook uit 33 verschillende delen bestaat, maar wel, dat de interpretatie niet zonder model kan geschieden.



De open cirkels geven zwakke of uit zwevingen berekende meetresultaten aan.

De relatieve nauwkeurigheid van de frequentiemetingen kan uit de spreiding van de meetresultaten geschat worden. Voor de lage frequenties is zij ongeveer 1%, oplopend tot ongeveer 3% voor de hoge frequenties, met nog hogere waarden voor enkele zwakke oscillaties. De syste-

matische fout, die bepaald wordt door de magneetveldcalibratie schatten we op 0,5% (zie §2.3.4).

In tabel 3.1 worden de frequenties met hun waarschijnlijke fout opgegeven van die takken, die de symmetrieassen snijden.

T a b e l 3.1					
dHvA frequenties bij de drie voornaamste symmetrieassen (F in 10^7 Gauss)					
[001]		[100]		[110]	
A	$0,171 \pm 0,002$	C ₁	$0,440 \pm 0,005$	C ₁	$0,57 \pm 0,01$
B	$0,326 \pm 0,003$	D ₁	$0,88 \pm 0,02$	D ₁	$1,16 \pm 0,03$
C ₂	$0,445 \pm 0,005$	H ₁	$2,08 \pm 0,02$	H ₃	$2,55 \pm 0,05$
E	$3,50 \pm 0,05$	K ₁	$3,40 \pm 0,05$	K ₃	$4,35 \pm 0,05$
F ₁	$5,4 \pm 0,1$	K ₂	$3,85 \pm 0,05$	L ₃	$6,85 \pm 0,1$
F ₂	$6,85 \pm 0,1$	L ₁	$5,55 \pm 0,1$	N ₁	$1,68 \pm 0,03$
G ₁	$11,0 \pm 0,2$	L ₂	$6,9 \pm 0,2$		
G ₄	$10,5 \pm 0,2$	M ₁	$9,1 \pm 0,2$		
		M ₂	$11,8 \pm 0,4$		
		N ₁	$1,55 \pm 0,05$		

3.1.3. In fig. 3.2 geven we een overzicht van de meetresultaten betreffende het dHvA in wit tin, van Shoenberg (1952), Berlincourt (1952), Croft, Love en Nix (1954), en van Gold en Priestley (1960) (GP). De eerste drie publicaties hebben betrekking op torsiemetingen, terwijl GP de pulsveldmethode toegepast hebben. Voor een onderlinge vergelijking moet bedacht worden, dat de amplitude bij torsiemetingen evenredig is met de dHvA frequentie F (de vrije energie \mathcal{Q} is éénmaal gedifferentieerd), die bij de pulsveldmethode met F^2 , en die bij onze RF methode met F^3 . Dit houdt in, dat bij de torsiemethode de laagfrequente oscillaties begunstigd worden t.o.v. de hoogfrequente, bij de RF metingen is het omgekeerd.

Shoenberg heeft gemeten in een veld van maximaal 16 kG (vgl. onze maximale veldsterkte van 35 kG); hij geeft een nauwkeurigheid op van

1% in zijn veldcalibratie. De meetresultaten beperken zich tot A en C oscillaties; de B oscillaties manifesteerden zich als zwevingen in de A oscillaties, maar werden door Shoenberg niet als afzonderlijke oscillaties herkend.

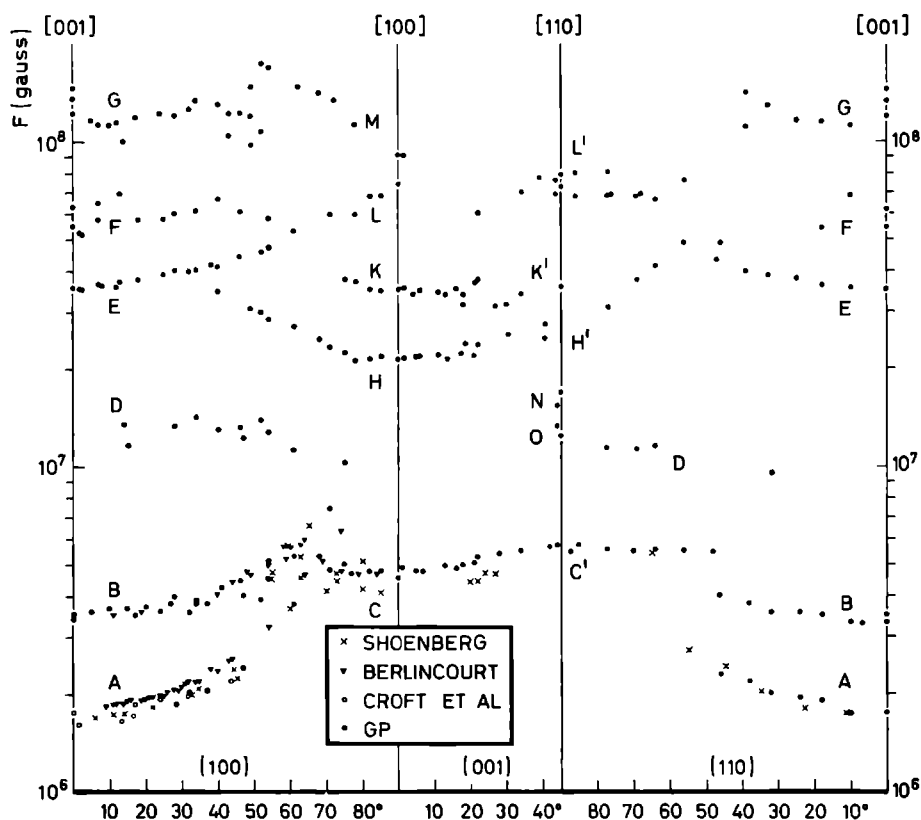


Fig.3.2. Meetresultaten van Shoenberg (1952), Berlincourt (1952), Croft, Love, en Nix (1954), en Gold en Priestley (1960) (GP). Veel punten in deze grafiek zijn gemiddelden van een aantal metingen bij dezelfde veldoriëntatie.

Berlincourt heeft alleen in het (100) vlak metingen gedaan, bij een veld van maximaal 14 kG. Hij geeft als nauwkeurigheid in de veldcalibratie 0,03%, hetgeen merkwaardig contrasteert met het feit, dat zijn meetresultaten van de A oscillaties systematisch hoger zijn dan die van alle anderen. Zijn metingen vertonen de minste spreiding. Berlincourt heeft gezocht naar een mogelijk isotoop effect in het dHvA, door aan verrijkte tin isotopen te meten (gemiddelde atoommassa's: 116,17;

118,70; 121,63; 123,77), maar hij heeft geen systematische verschillen kunnen vaststellen.

Croft, Love en Nix hebben het eerst een automatisch gecompenseerde torsiebalans toegepast. Hun metingen (alleen in (100)) hadden als doel de invloed van verontreinigingen (n.l. van antimoon) in tinkristallen vast te stellen. Ze vonden geen andere invloed dan die op de Dingle-temperatuur, die bij toenemende onzuiverheid blijkt toe te nemen. Hetzelfde heeft ook Shoenberg gevonden, die zijn tinkristallen met kwik of indium verontreinigde. Er is weinig overeenstemming over de waarde van de Dingle-temperatuur voor zuiver tin: deze loopt voor de A oscillaties nabij [001] uiteen van 0,1 tot 1,6°K (vgl. § 1.3 en 1.4.3). Croft c.s. hebben bij een veldsterkte van maximaal 9,5 kG gemeten, en geven geen nauwkeurigheid van de veldcalibratie op.

De meeste meetresultaten van fig. 3.2 zijn afkomstig van *Gold en Priestley* (GP). Zij zijn ook de eersten geweest, die de meetresultaten voor tin trachtten te interpreteren aan de hand van het bijna-vrije-electronen model (zie § 4.1). Hun maximale veldsterkte was 80 kG (in enkele gevallen 150 kG), bereikt in pulsen van 11 ms. Ze geven geen schatting van de nauwkeurigheid van hun meetresultaten. Behalve frequenties van het dHvA hebben ze ook van een aantal oscillaties bij de drie symmetrieassen de cyclotronmassa m_c gemeten (vgl. § 1.2). In tabel 3.2 zijn de meetresultaten van GP samengevat.

T a b e l 3.2								
Meetresultaten van Gold en Priestley (1960) (GP)								
(F in 10^7 Gauss)								
[001]			[100]			[110]		
	F	m_c/m		F	m_c/m		F	m_c/m
A	0,175	0,09	C	0,475	0,26	C'	0,62	0,34
B	0,35	0,15	H	2,1	0,45	L'	7,4	0,75
E	3,6	0,51	K	3,5	0,50	K'	4,65	1,16
F	5,55	0,64	L	6,9		N	1,7	
G	11,4	0,70	M	9,1	1,27	O	1,3	

Shoenberg en Berlincourt vinden voor de cyclotronmassa van de A oscillaties nabij [001] : 0,10, en Berlincourt vindt voor de C oscillaties

nabij [100] : 0,22. De onnauwkeurigheid in deze bepalingen van m_c uit het dHvA is $\approx 10\%$.

In fig. 3.2 zijn een groot aantal punten het gemiddelde van twee of meer afzonderlijke metingen. We hebben dit gedaan om de figuur niet node-loos gecompliceerd te maken. Daarom kan men uit fig. 3.2 niet de spreiding van de meetresultaten afleiden. In § 3.2 zijn in verschillende figuren alle meetresultaten (dus niet hun gemiddelden) uit genoemde publicaties weergegeven.

Voor de lage frequenties ($F < 2$) blijkt dat de resultaten van Berlincourt systematisch hoger, en die van Croft c.s. systematisch lager zijn dan de overige. Met in acht neming van de spreiding zijn onze meetresultaten in overeenstemming met die van Shoenberg en van GP, terwijl onze spreiding vergelijkbaar is met die van Berlincourt, en minder is dan die van de overige onderzoekers. Voor de hogere frequenties vertonen onze metingen i.h.a. minder spreiding dan die van GP, waardoor veel meer details naar voren komen.

Een vergelijking van fig. 3.1 met fig. 3.2 geeft een verklaring van onze nomenclatuur: we hebben ons aangesloten bij die van GP, en de hoofdletters waar nodig voorzien van een index. Voor het overige moet aan de nomenclatuur geen betekenis worden toegekend.

Voorts moge deze vergelijking dienstig zijn aan een rechtvaardiging van ons onderzoek. Blijkbaar hebben wij een veel groter scheidend vermogen kunnen realiseren. Met uitzondering van GP's D oscillaties in (100) zijn de meetresultaten van fig. 3.2 geheel consistent met die van ons in fig. 3.1. Voor meer details zie § 3.2.

3.1.4. In de fig. 3.3 en 3.4 wordt een schematisch overzicht geboden van de relatieve amplitude van een aantal RF metingen. De takken, waarvan de amplituden niet is aangegeven, zijn zwakke oscillaties (in fig. 3.1 weergegeven door open cirkels).

Aan deze figuren moet niet al te veel betekenis worden toegekend. De amplitude is een slecht reproduceerbare grootte, afhankelijk van verschillende experimentele omstandigheden, en we vinden dan ook in onze metingen een spreiding van soms meer dan een factor twee.

Fig. 3.5 is een soortgelijke grafiek, gegeven door GP, alleen voor (100). We herinneren eraan, dat de amplitude van de metingen van GP evenredig is met F^2 , en die van ons met F^3 . Om tot een juiste vergelijking te komen, moet men dan ook onze metingen delen door F . Doen we dit, en houden we er ook nog rekening mee, dat GP bij een aanmerkelijk hoger veldsterkte gemeten hebben dan wij, dan zijn onze grafieken 3.3 en 3.4 in redelijke overeenstemming met fig. 3.5.

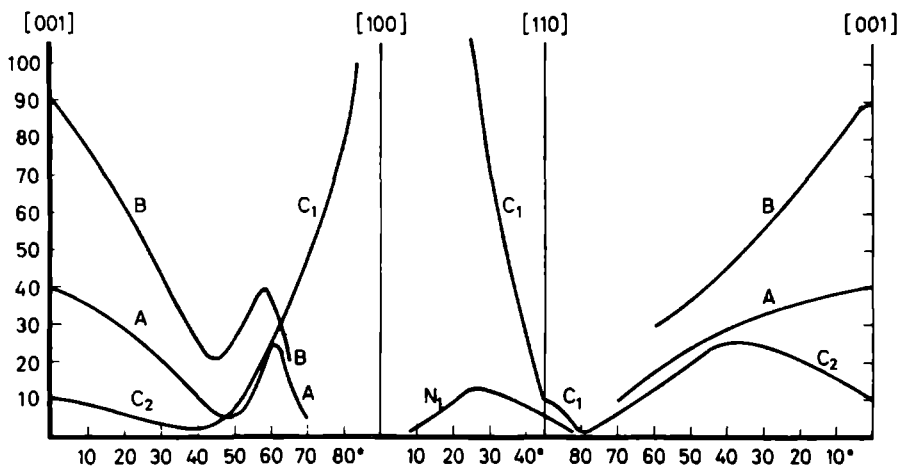


Fig.3.3. Schematische weergave van de amplitude van de 'laag-frequente' dHvA oscillaties ($F < 2$). Het verloop van de C_1 oscillaties nabij $[100]$ is in fig.3.4 aangegeven. Een schaaldeel komt overeen met $\approx 4 \times 10^{-7}$ Volt.

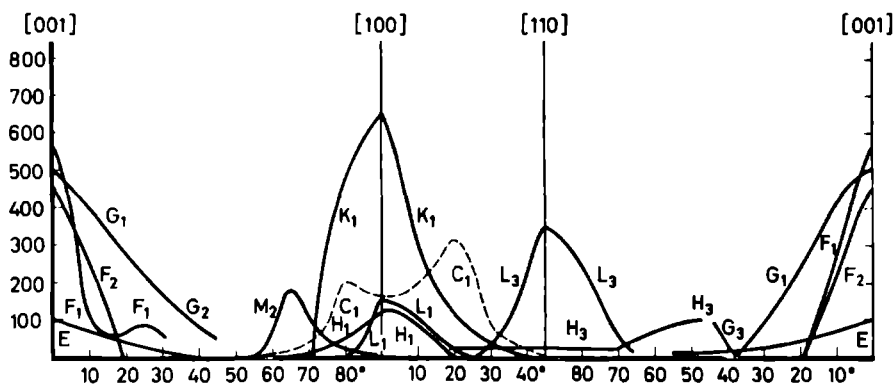


Fig.3.4. Schematische weergave van de amplitude van een aantal 'midden' en 'hoogfrequente' dHvA oscillaties (resp. $2 < F < 10$, en $F > 10$), en van C_1 nabij $[100]$. Omdat bij deze frequenties de energieversterker niet gebruikt wordt, is de eenheid 100 x kleiner gekozen dan in fig.3.3: 100 schaaldelen komen overeen met $\approx 4 \times 10^{-7}$ Volt.

In § 1.4.2 en § 2.2.1 hebben we opgemerkt, dat voor lage dHvA frequenties ($F < 2$) het sweepveld tien maal versterkt kan worden, waardoor het te meten signaal 100 maal sterker wordt, terwijl tegelijk de hogere frequenties worden onderdrukt. Daarom kunnen van de laagfrequente

oscillaties (n.l. die in fig. 3.3 zijn weergegeven) soms zwakkere signalen gemeten worden dan van de overige.

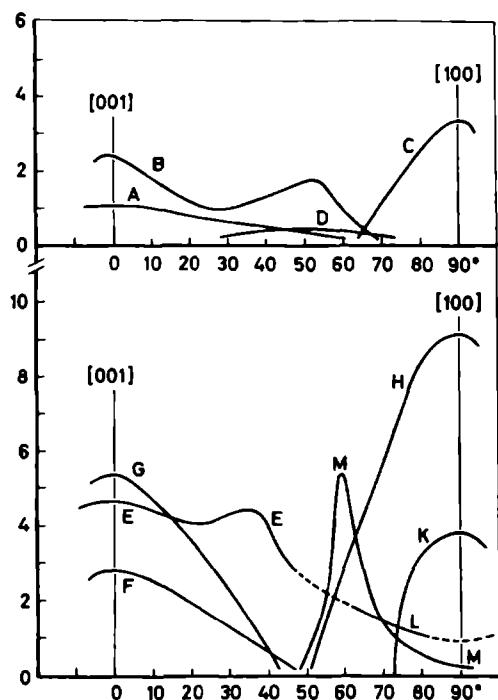


Fig.3.5. Amplitude van de dHvA oscillaties, gemeten door GP.
Een schaaldeel komt overeen met $|dM/dH| \approx 10^{-3}$.

In § 2.2.4 hebben we aangetoond dat de ruis bepaald wordt door de wisselwerking van de 'veldruis' met het dHvA, zodat (zonder energieversterker) de kleinste meetbare amplitude $\approx 10^{-8}$ Volt is.

Wanneer twee of meer oscillaties optreden, waarvan de frequentie slechts weinig verschilt, en die een vergelijkbare amplitude hebben, zal men zwevingen kunnen verwachten. Door met de ultra-laag-frequent selectieve versterkers te manipuleren konden we i.h.a. beide oscillaties om beurten de grootste laten zijn. Waar dat niet het geval is, wordt dit in § 3.2 afzonderlijk vermeld.

3.2. Gedetailleerde discussie van de meetresultaten

3.2.1. A, B en N oscillaties

In fig. 3.6 hebben we de A, B, C, N₂ en N₃ oscillaties weergegeven,

en vergeleken met de meetresultaten van Shoenberg, Berlincourt, Croft c.s., en GP (de C oscillaties worden in § 3.2.2 besproken). Onze resultaten stemmen goed overeen met die van Shoenberg en van GP, terwijl die van Berlincourt grotere, en die van Croft c.s. kleinere waarden opleveren. De spreiding in onze meetresultaten (ongeveer 1%) is alleen vergelijkbaar met die van Berlincourt's metingen, en is kleiner dan in die van Shoenberg, Croft c.s., en GP. Uit de figuur blijkt tevens, dat er geen verschillen zijn tussen de metingen aan verschillende kristallen.

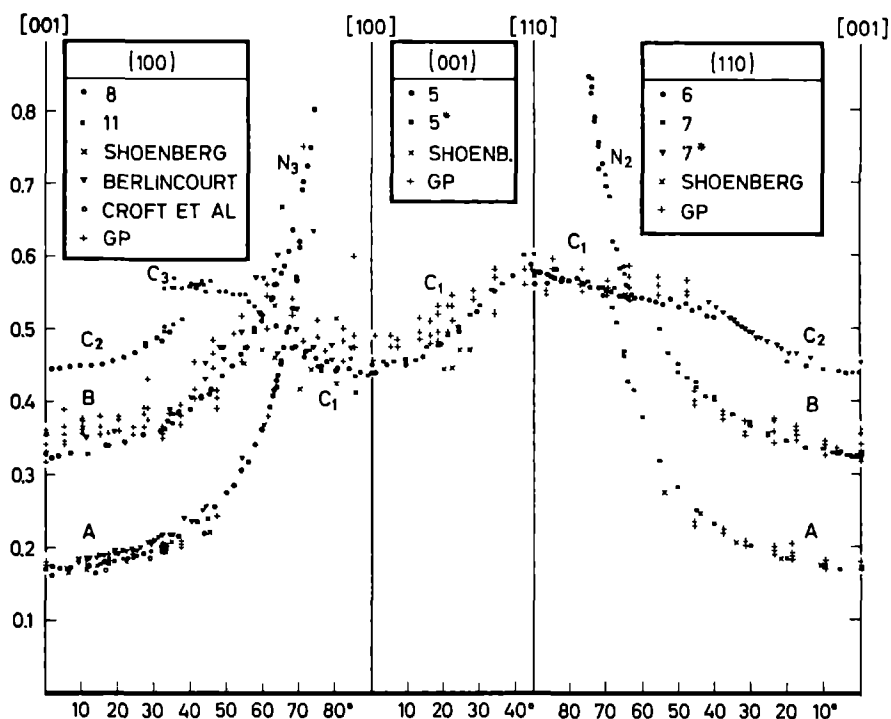


Fig.3.6. A, B, C, N₂, en N₃ oscillaties.

In fig. 3.7 zijn de N₁ oscillaties weergegeven. Nabij $[100]$ zijn ze zwak, en gaan ze verloren in de juist daar zeer sterke C₁ oscillaties. Het heeft geen zin onze meetresultaten te vergelijken met die van GP, omdat zij slechts enkele punten op $[110]$ gemeten hebben. Ook nu hebben we aan meer dan één kristalmontage metingen verricht. Daar de N₁ oscillaties in (110) sterk hoekafhankelijk zijn hebben we in één geval ter weerszijden van de symmetrieas metingen gedaan. Geen systema-

tische verschillen werden gevonden, maar daarvoor is wellicht de spreiding (3%) te groot.

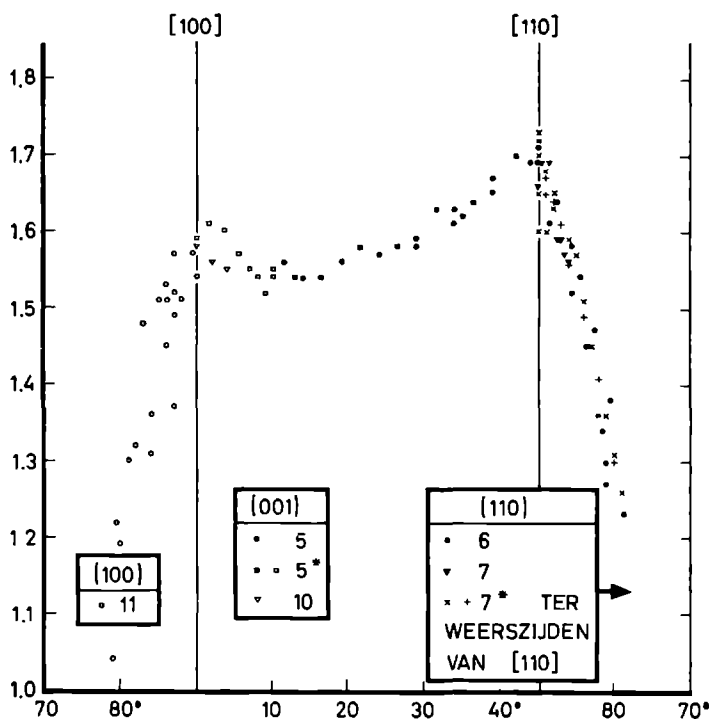


Fig.3.7. N_1 oscillaties
De open cirkels etc. stellen zwakke oscillaties voor.

In fig. 3.8 hebben we voor de A en B oscillaties F^{-2} versus $\cos^2 \varphi$ uitgezet. Voor een ellipsoïdaal, hyperbolisch, of cilindrisch oppervlak geldt:

$$\begin{aligned} F^{-2} &= \alpha \cos^2 \varphi \cdot (a^{-2} \mp c^{-2}) \pm \alpha c^{-2}, \text{ gemeten in } (100) \\ F^{-2} &= \beta \cos^2 \varphi \cdot (b^{-2} \mp c^{-2}) \pm \beta c^{-2}, \text{ gemeten in } (110) \end{aligned} \quad (3.1)$$

c is de halve hoofdas in de $[001]$ richting, a en b zijn de halve diameters $// [100]$ resp. $// [110]$ (we laten in het midden, of a of b een halve hoofd-asis). α en β zijn constanten. De bovenste tekens gelden voor de ellipsoïde, de onderste voor de hyperboloïde, voor de cilinder is $c^{-1} = 0$. Indien één van deze drie gevallen geldt zal F^{-2} als functie van $\cos^2 \varphi$ een rechte lijn zijn. Geëxtrapoleerd zullen in het eerste geval de lijnen de verticaal bij $\varphi = 90^\circ$ boven nul snijden, in het tweede geval onder nul, in het derde geval precies op de nullijn.

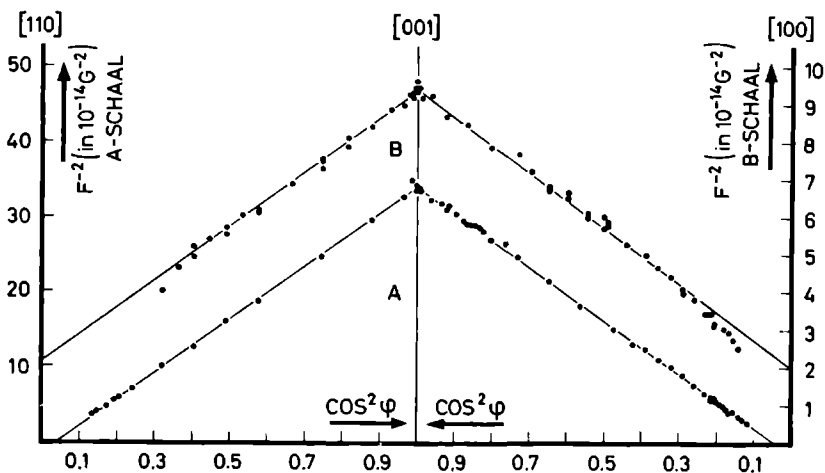


Fig.3.8. F^{-2} als functie van $\cos^2 \varphi$ voor de A en B oscillaties.
(op verschillende schaal)

Voor de A oscillaties zien we uit fig. 3.8, dat het oppervlak zich gedraagt als een hyperboloïde, waarvoor $a = b$ en $c/a = 4,5$. De B oscillaties gedragen zich als overeenkomend met een ellipsoïde, met $a/b = 1,02$ en $c/b = 2,15$ (de nauwkeurigheid is $\approx 2\%$). Boven 55° in (100) en 50° in (110) gaat de vorm van het met B corresponderende deel van het FS blijkbaar van een ellipsoïde afwijken.

Wij wijzen erop, dat niet *bewezen* is, dat de resp. oppervlakken over de aangegeven hoeken een hyperbolisch, resp. ellipsoïdaal verloop hebben. Indien de oppervlakken zo zijn, moet aan (3.1) voldaan zijn, maar deze stelling kan niet zonder meer omgekeerd worden. Wel menen we uit het hoekverloop af te kunnen leiden, dat de resp. doorsneden $1[001]$ nagenoeg cirkelvormig zijn.

Voorts blijkt dat tot $\approx 70^\circ$ de A oscillaties met minimale, en de B oscillaties met maximale doorsneden overeenkomen. Uit fig. 3.6 en 3.7 kan afgeleid worden, dat de A en B oscillaties nabij 70° in elkaar overgaan, en voortgezet worden als N_2 en N_3 , en vervolgens als N_1 oscillaties. We veronderstellen daarom dat de B oscillaties overeenkomen met niet-centrale maximale doorsneden van het deel van het FS, waarvan de A oscillaties de centrale, minimale doorsneden vormen, en de N oscillaties centrale, maximale doorsneden (met centrum wordt hier bedoeld het eventuele inversiecentrum van het betreffende gesloten deel van het FS).

Op grond van deze veronderstelling is fig. 3.9 geconstrueerd. Dit is

een polair diagram, waarin 'gereduceerde' diameters zijn uitgezet.

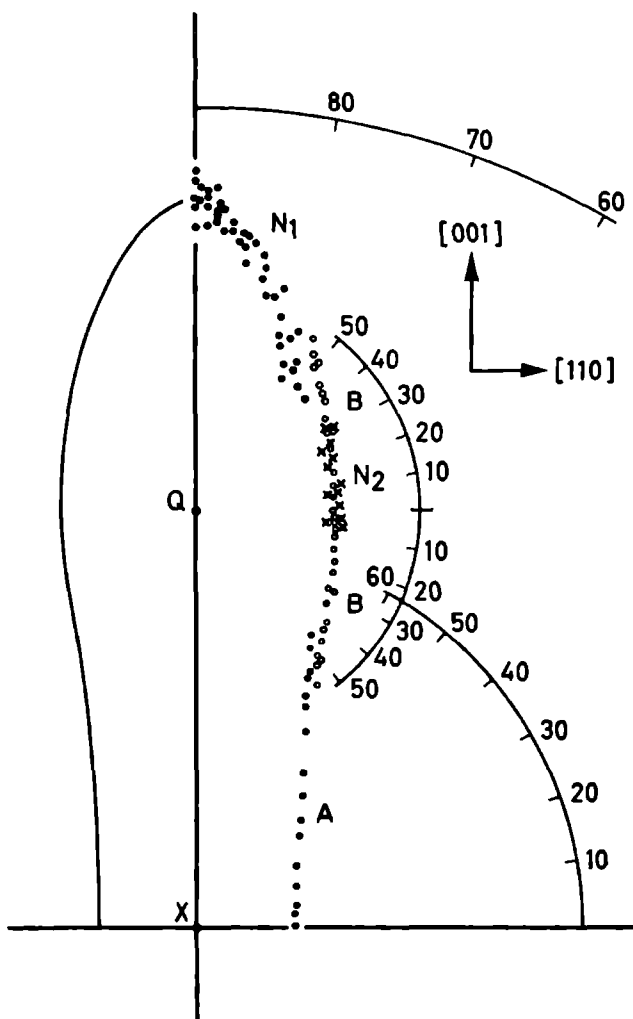


Fig.3.9. Constructie van het deel van het FS, dat overeenkomt met de A, B, en N oscillaties.

Voor $\varphi = 0$ (waar $F = F_0$) is de diameter d_0 van de met A resp. B corresponderende doorsnede (cirkelvormig verondersteld, zie boven) berekend m.b.v. formule (1.10) (zie ook § 4.1.1). Voor $\varphi \neq 0$ zijn de diameters in dezelfde verhouding uitgezet: $d = d_0 F / F_0$. Het zo verkregen diagram is een afbeelding van de doorsnede van het FS met het (110)

vlak, indien verondersteld mag worden dat voor elke $\varphi \leq 60^\circ$ de doorsnede een ellips is. De oorsprong Q van het met de B oscillaties corresponderende polaire diagram wordt zo gekozen, dat een goede aanpassing van de A en B punten bereikt wordt. De N_3 punten zijn zo gereduceerd, dat een goede aanpassing met de B punten (in de grafiek twee maal weergegeven) ontstaat, ende N_1 metingen zodanig, dat het oppervlak van de verkregen figuur overeenkomt met de dHvA frequentie van N_1 op $[110]$.

We veronderstellen nu, dat het FS, overeenkomend met de A, B, en N oscillaties nagenoeg, maar niet geheel, omwentelingsymmetrisch om $[001]$ is (in de vorm van een 'halter'), op grond van de volgende argumenten:

- a. Het hoekverloop van de A en B oscillaties in (100) en (110) is nagenoeg gelijk (zie fig. 3.6 en 3.8).
- b. De frequentie van de N_1 oscillaties in (001) is nagenoeg constant (zie fig. 3.7). De doorsnede van het FS $\perp [100]$ is slechts 8% kleiner dan die $\perp [110]$.

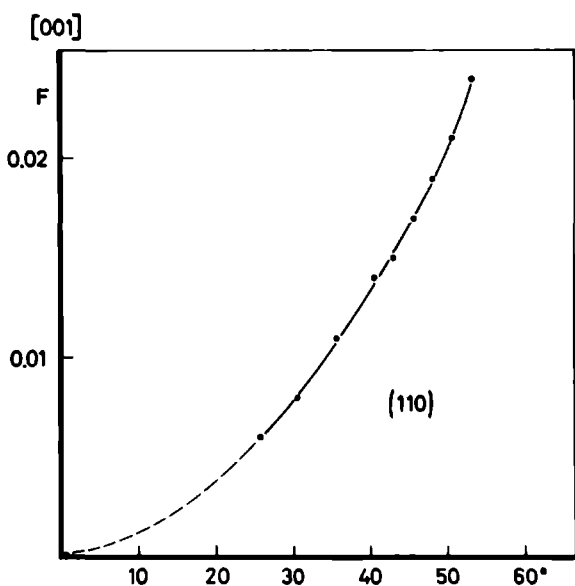


Fig.3.10. Zwevingen in de B oscillaties in (110).

- c. In de B oscillaties in (110) hebben we zwevingen aangetroffen met een grote periode; tussen 25 en 55° kon de verschilfrequentie bepaald worden, en deze is weergegeven in fig. 3.10. De grafiek suggereert dat de zwevingsfrequentie voor $\varphi = 0$ nul is. Hieruit kan geconcludeerd wor-

den, dat de 'bijna-omwentelingsas' voor dit deel van het FS geen viertallige, maar een tweetallige as is. Om aan de eis van de viertalligheid van de $[001]$ as te voldoen, moeten er dan twee gelijke delen van het FS zijn, die 90° ten opzichte van elkaar om $[001]$ gedraaid zijn. In (110) worden in dat geval voor $\varphi \neq 0$ telkens twee dHvA frequenties tegelijk gemeten, die slechts weinig verschillen, omdat het oppervlak bijna omwentelingsymmetrisch is. De verschilfrequentie neemt, gerekend van $\varphi = 0$ tot 50° , toe van nul tot 7% van de frequentie van de B oscillaties.

We komen op deze interpretatie van de A, B en N oscillaties terug in § 4.2.2.

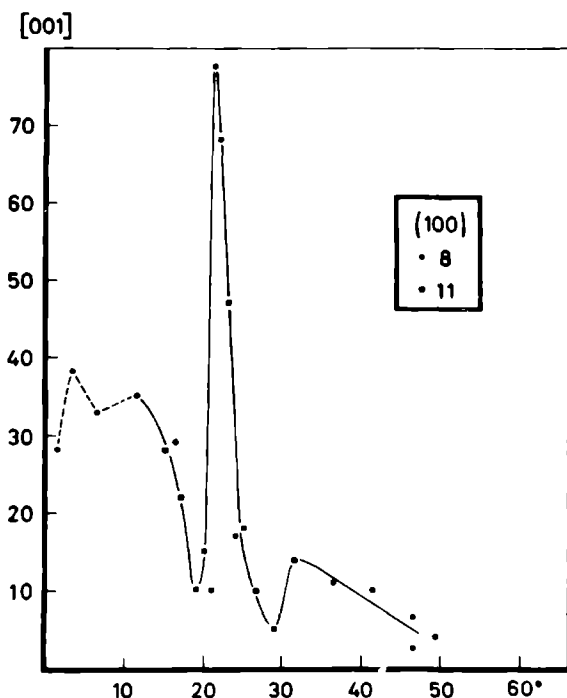


Fig.3.11. Gedetailleerde weergave van de amplitude van de A oscillaties in (100). De eenheid is dezelfde als in fig.3.3.

In fig. 3.11 hebben we in meer detail dan in fig. 3.3 de variatie van de amplitude van de A oscillaties in (100) weergegeven. We hebben voor de eigenaardige piek bij $\approx 22^\circ$ geen verklaring.

Wanneer we op grond van de theorie uit hoofdstuk 1 een schatting maken van de amplitude van de tweede harmonische van de A en B oscillaties, dan blijkt dat die van dezelfde orde van grootte als die van de

grondtoon moet zijn, tenzij de Dingle-temperatuur relatief groot is (metingen van Shoenberg en van Croft c.s. van de Dingle-temperatuur leveren voor de A oscillaties nabij $[001]$ waarden tussen 0,1 en 1,6 $^{\circ}\text{K}$ op). Dit geldt vooral voor de A oscillaties, en we moeten dan ook aannemen, dat de tweede harmonische daarvan in feite gecamoufleerd wordt door de veel sterkere B oscillaties.

3.2.2. C en D oscillaties

In fig. 3.6 hebben we onze meetresultaten van de C oscillaties vergeleken met die van Shoenberg, Berlincourt, en GP. In (100) liggen onze meetresultaten beneden die van Berlincourt en van GP, maar boven die van Shoenberg, in (001) liggen onze resultaten eveneens tussen die van Shoenberg en van GP, terwijl de overeenstemming in (110) wat beter is. Onze meetresultaten aan verschillende kristallen zijn niet geheel consistent: zowel op $[100]$ en op $[110]$, als in (110), zijn er systematische verschillen tussen de metingen, gedaan aan verschillende kristallen. Dit wijst op een relatief grote afhankelijkheid van de oriëntatie van het vlak, waarin gemeten wordt, hetgeen overeenstemt met de hierna af te leiden vorm van het corresponderende deel van het FS.

In fig. 3.12 hebben we de C oscillaties nog eens weergegeven. De C_1 en C_2 oscillaties kunnen beschouwd worden als te behoren tot één gesloten oppervlak, terwijl de C_3 oscillaties als een aparte tak te beschouwen zijn. In fig. 3.12 hebben we het verloop aangegeven van de doorsneden van een kubus, met ribben (aangepast aan onze meetresultaten op $[001]$ en $[100]$) langs $[001]$, $[100]$, en $[010]$. Uit fig. 3.12 kan nu afgeleid worden dat het corresponderende deel van het FS een afgeronde kubus is; het effect van de afronding is uiteraard het sterkst in (110), speciaal op $[110]$, en bij 45° in (100). We komen op dit deel van het FS terug in § 4.2.5.

Uit fig. 3.1 blijkt al, dat de frequenties van de D_1 en de D_2 oscillaties binnen de meetnauwkeurigheid tweemaal zo groot zijn als die van de C_1 en C_2 oscillaties. In fig. 3.12 zijn de C en D oscillaties samen weergegeven, waarbij de schaal voor de C oscillaties tweemaal zo groot is als die voor de D oscillaties. Met in acht neming van de spreiding kunnen we nu de D_1 en D_2 oscillaties opvatten als tweede harmonischen van de C_1 en C_2 oscillaties.

De D oscillaties zijn i.h.a. zwak, waardoor hun amplitude moeilijk meetbaar is. Alleen in de buurt van $[100]$ kan een betrouwbare schatting gemaakt worden, en deze levert voor de verhouding tussen de amplitude van de C_1 en D_1 oscillaties een waarde op van 125, in overeenstemming met de theorie van hoofdstuk 1, wanneer de Dingle-tempera-

tuur ongeveer 2° is.

De D_3 oscillaties in (110) zijn kennelijk een aparte tak. De D metingen van GP in (100) hebben wij niet kunnen reproduceren. Dit kan samenhangen met het feit dat GP bij een aanmerkelijk hoger veld gemeten hebben dan wij. We veronderstellen dat de O oscillaties van GP nabij $[110]$ met onze D_1 oscillaties geïdentificeerd moeten worden.

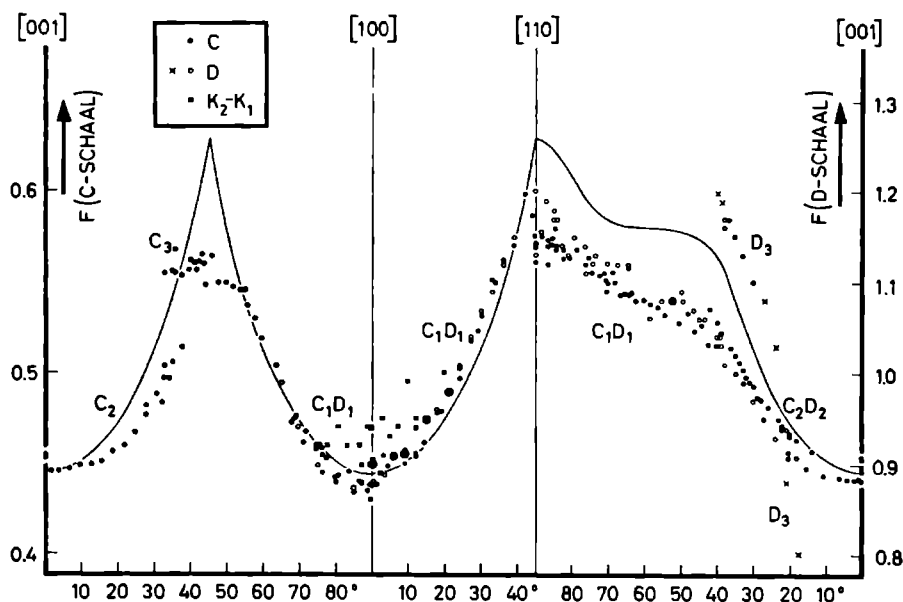


Fig.3.12. dHvA frequenties van de C en D oscillaties, en van de zwevingen in de K_1 oscillaties (zie § 3.2.3).

De getrokken lijn geeft de hoekvariatie aan van de extremale doorsnede van een kubus met ribben langs $[100]$, $[010]$, en $[001]$.

De D schaal is twee maal zo klein als de C schaal.

De kruisjes in D_3 zijn uit zwevingen bepaald.

3.2.3. E, F, H, K, L, en M_1 oscillaties

In fig. 3.13 zijn onze meetresultaten voor verschillende kristallen en die van GP weergegeven voor die oscillaties, waarvoor $2 < F < 10$. Opnieuw blijken onze meetresultaten goed overeen te komen met die van GP, maar met aanmerkelijk minder spreiding, waardoor we meer takken konden onderscheiden.

Geen van deze takken is bij elke oriëntatie van het magnetisch veld te meten - d.w.z. dat geen enkele tak overeenkomt met een gesloten stuk van het FS. Het is dan ook niet mogelijk zonder uit te gaan van een mo-

del conclusiestetrekken over de vorm van het FS, dat met deze takken overeen komt; we moeten in dit hoofdstuk volstaan met het maken van enkele opmerkingen, en voor de interpretatie verwijzen naar § 4.2.

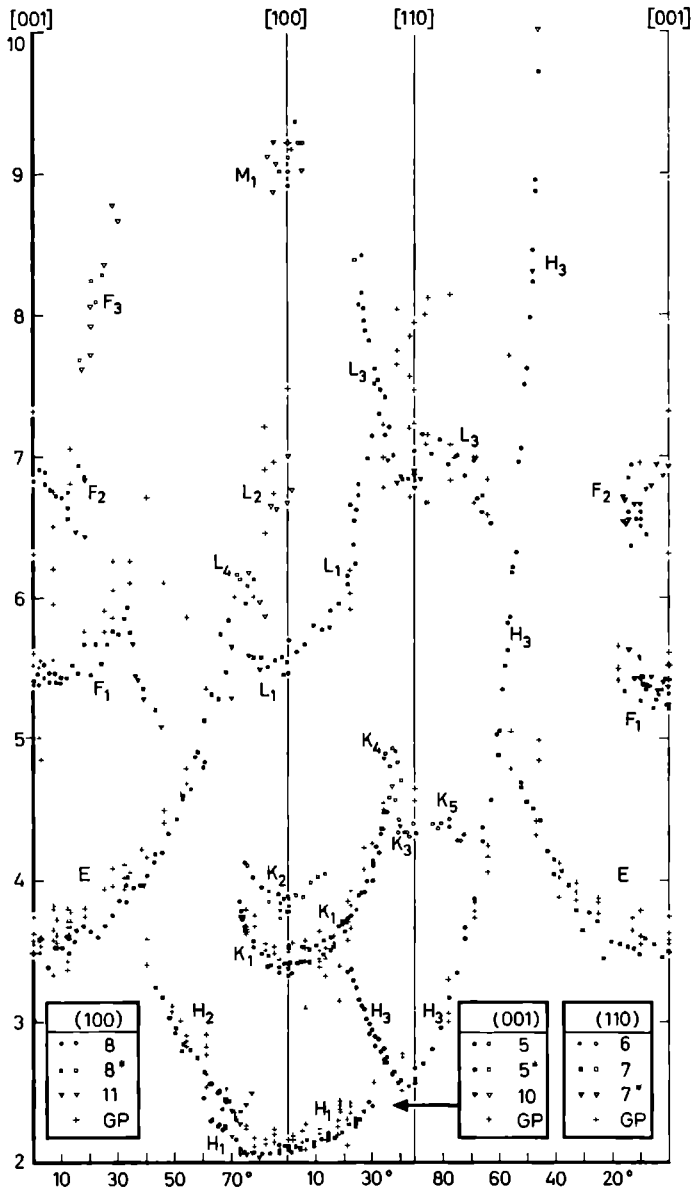


Fig.3.13. 'Middenfrequente' dHvA oscillaties ($2 < F < 10$).
De open cirkels etc. stellen zwakke oscillaties voor.

De E oscillaties zijn, vooral op enige afstand van $[001]$, relatief zwak. Uit fig. 3.13 valt op te maken dat deze tak in (100) zeker tot 70° bestaat; op grond van het in hoofdstuk 4 te bespreken model moeten we aannemen dat noch L_1 , noch L_4 als vervolg van E beschouwd mag worden. In (110) kunnen we E niet verder volgen dan tot ongeveer 60° , waar de E oscillaties overheerst worden door de sterkere H_3 oscillaties.

In de F oscillaties hebben we drie takken onderscheiden. F_1 en F_2 zijn relatief sterk, F_3 is relatief zwak. Uit fig. 3.4 blijkt dat de amplitude van F_1 en F_2 in (110) , en die van F_2 in (100) bij toenemende hoek steil afneemt. Voor F_1 in (110) verdwijnen de oscillaties bij ongeveer 16° (GP rapporteren nog metingen bij 18°), voor F_2 in (110) bij 16° , in (100) bij 18° .

Ook van de H oscillaties verschaffen onze metingen meer gedetailleerde informatie. In (100) kunnen nu H_1 en H_2 onderscheiden worden, in (001) H_1 en H_3 . H_3 wordt in (110) van 90° tot 46° gemeten, en vertoont van alle takken de grootste hoekafhankelijkheid. Het is niet helemaal duidelijk of in (100) de H oscillaties twee of drie takken vormen. De twee mogelijkheden zijn in fig. 3.14 schematisch aangegeven.

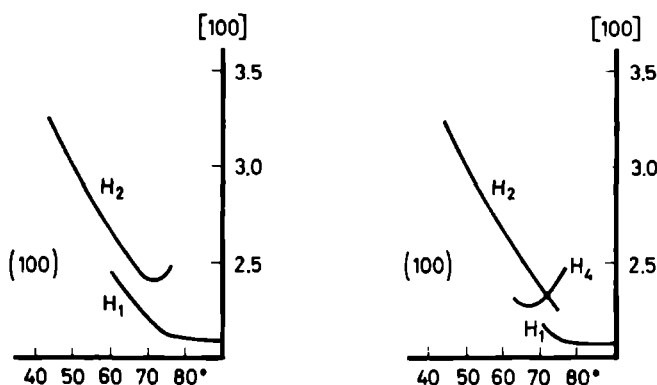


Fig.3.14. H oscillaties in (100) . Zie tekst.

De K oscillaties hebben we in vijf takken onderscheiden. De K_1 oscillaties eindigen in (100) abrupt bij 72° (vgl. fig. 3.4). In (001) eindigen ze in de zwakke K_4 oscillaties, waarvan het eventuele verband met K_3 en K_5 niet erg duidelijk is. De K_2 oscillaties worden gedeeltelijk uit zwevingen in de K_1 oscillaties, gedeeltelijk rechtstreeks gemeten. In fig. 3.12 (zie § 3.2.2) hebben we het frequentieverschil tussen K_2 en K_1 vergeleken met de C_1 oscillaties. Uit de figuur volgt, dat K_2 opgevat kan worden als de som van K_1 en C_1 , d.w.z. dat K_2 een breakdown verschijnsel is (zie § 4.2.6).

Uit de theorie van hoofdstuk 1 volgt voor de amplitudeverhouding van de eerste en tweede harmonische van K_1 een factor 10, indien de spin-term en de Dingle-temperatuur buiten beschouwing gelaten worden. Merkwaardig is, dat de spin-term nul geeft: als $m_c = 0,50$, zoals GP opgeven, en $g = 2$, dan is $\cos g\pi m_c/2m = 0$. Dit resultaat is wel heel onwaarschijnlijk, daarde K_1 oscillaties juist tot de zeer sterke behoren. Nemen we aan, dat de opgegeven cyclotronmassa goed is, dan moet de spinsplitsingsfactor g wel ongelijk aan twee zijn. Daar ook de Dingle-temperatuur voor K_1 onbekend is, kunnen we moeilijk een schatting maken van de amplitude van de tweede harmonische, en slechts stellen, dat een mogelijke meting ervan niet onwaarschijnlijk is. Indien we nu de L_2 oscillaties beschouwen, die zwak en moeilijk meetbaar zijn, dan zien we dat binnen de meetnauwkeurigheid de frequentie daarvan het dubbele is van die van K_1 ; we vermoeden dan ook, dat L_2 de tweede harmonische van K_1 is.

De L_2 en L_4 oscillaties zijn relatief zwak. De metingen van GP nabij $[110]$ voor $F \approx 8$ hebben we niet kunnen reproduceren. De L_3 oscillaties in (110), gemeten aan kristal nr. 6 zijn te hoog, zoals een latere controle aan kristal nr. 7* heeft uitgewezen. De afwijking, die wijst op een grote afhankelijkheid van de oriëntatie van de normaal op het vlak, waarin gemeten wordt, is weinig groter dan de gemiddelde spreiding.

Tenslotte zijn in fig. 3.13 ook de zwakke M_1 oscillaties weergegeven. We merken op, dat de frequentie van K_1 , vermeerderd met die van L_1 , die van M_1 oplevert, zodat M_1 als breakdown tussen K_1 en L_1 opgevat kan worden (zie § 4.2.6).

3.2.4. G en M_2 oscillaties

In fig. 3.15 hebben we de hoogfrequente meetresultaten ($F > 10$) weergegeven. GP identificeren M_1 met M_2 , maar uit onze metingen blijkt dat ze onderscheiden moeten worden. Nabij $[100]$ zijn ook de M_2 oscillaties zwak, maar de amplitude neemt in (100) bij afnemende hoek sterk toe, bereikt bij ongeveer 65° een maximum, om vervolgens bij 55° tot nul af te nemen (zie fig. 3.4). Dit gedrag wordt ook door GP vermeld (zie fig. 3.5).

De G oscillaties onderscheiden we in vier takken. De spreiding in de meetresultaten is 3 à 5%, terwijl het frequentieverschil tussen G_1 en G_4 op $[001]$ 5% is, zodat het onderscheiden van deze twee takken dubieus is. De amplitude van de G oscillaties in (110) wordt (gerekend vanaf $[001]$) bij 38° nul, om dan weer toe te nemen (zie fig. 3.4). GP hebben bij $[001]$ hogere waarden voor de frequentie gevonden dan wij, overigens is er een redelijke overeenstemming.

De spreiding in de G en M₂ oscillaties is procentueel aanmerkelijk groter dan die in de laag- en middenfrequente oscillaties. Dit hangt samen met de grotere 'toevallige' fout in de magneetveldmeting. Om ongeveer 100 periodes van deze oscillaties te meten bij ≈ 35 kG, moet het veld over $\approx 5\%$ gevarieerd worden. Als de fout in de bepaling van de onderste en bovenste grens van dit veldgebied $\approx 0,1\%$ is, levert dit een fout van $\approx 2\%$ in de bepaling van de dHvA frequentie op. Voor de lagere dHvA frequenties wordt het veldgebied groter gekozen, en is deze fout dus kleiner.

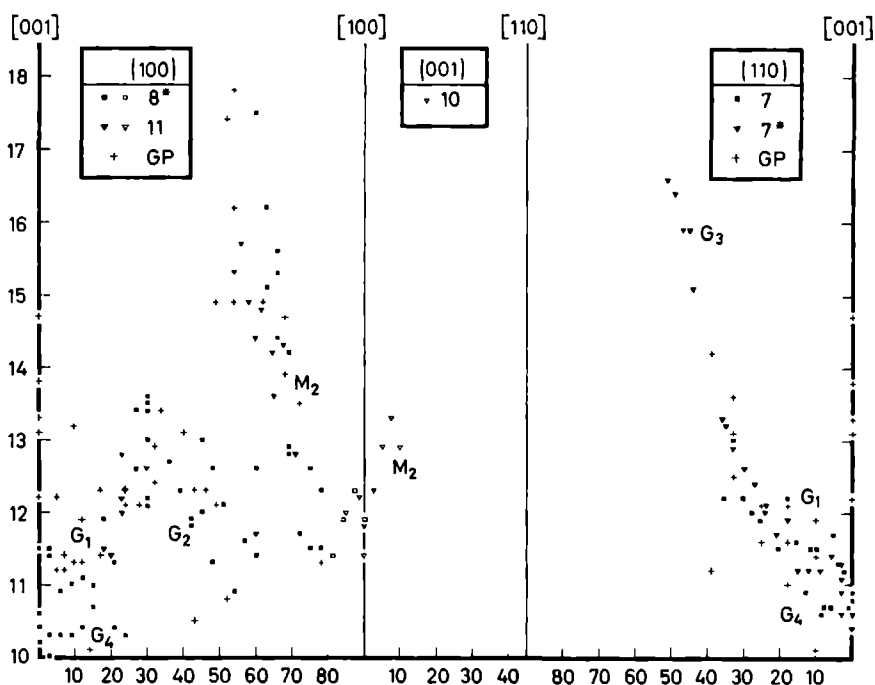


Fig.3.15. 'Hoogfrequente' dHvA oscillaties ($F > 10$).
De open cirkels en driehoekjes stellen zwakke oscillaties voor.

De G oscillaties nabij [001] leverden opmerkelijke 'schijnzwevingen' op: niet-periodieke variaties in de amplitude, die doen denken aan de verschijnselen in het dHvA in beryllium, die men aan 'magnetische interactie' toeschrijft (vgl. § 1.3). We hebben deze schijnzwevingen niet nader onderzocht.

3.3. Andere metingen

3.3.1. In deze paragraaf bespreken we een aantal publicaties van metingen, die evenals de onze betrekking hebben op de geometrie van het FS van wit tin.

In § 3.3.2 - 3.3.5 worden achtereenvolgens metingen van de magnetoweerstand, van de cyclotronresonantie, van magneto-acoustische en van geometrische resonanties besproken.

Enkele publicaties, die voorshands geen nieuwe informatie over de vorm van het FS geven, maar van oudere informatie uitgaan, of deze bevestigen, vermelden we in § 3.3.6.

3.3.2. Alekseevskii c.s.

Alekseevskii, Gaidukov, Lifshitz, en Peschanskii (1960) hebben de magnetoweerstand van tin gemeten als functie van de veldoriëntatie. De elektrische weerstand van een metaal neemt bij lage veldsterkte steeds toe, als het veld toeneemt. Indien de electronbanen op het FS loodrecht op de veldrichting alle gesloten zijn, zal er bij toenemend veld verzadiging optreden, zodat bij hoge veldsterkte de weerstand veldonafhankelijk is. Indien er tevens of alleen open banen zijn, neemt de weerstand onbeperkt met de veldsterkte toe. Open banen kunnen alleen op opdelen van het FS bestaan, gesloten banen zowel op open als gesloten delen van het FS.

Onafhankelijk van een model hebben Alekseevskii c.s. hun metingen geanalyseerd, en zijn ze gekomen tot een constructie van het FS; later bleek dat deze constructie zo gewijzigd kon worden, dat zij overeenkwam met de vierde zone van het bijna-vrije-electronen model (Alekseevskii c.s. (1961)), maar ook deze interpretatie is aanvechtbaar (zie § 4.2.3 en 4.2.4).

Voorlopig is voor ons de belangrijkste conclusie, dat alle open banen op het FS ongeveer gelocaliseerd zijn in een vlak $\perp [001]$. Voor alle andere richtingen geldt, dat er geen open banen zijn.

3.3.3. Khaikin

Khaikin (1961, 1962a, 1962b) (K) heeft cyclotronmassametingen verricht, met als resultaat de cyclotronmassa's van een groot aantal takken in (100) en (001). De meetresultaten, weergegeven in fig. 3.16, zijn veel nauwkeuriger dan die met dHvA metingen verkregen kunnen worden (vgl. § 3.1.3). De laatste kunnen echter gebruikt worden om de cyclotronresonantiemetingen te identificeren.

K heeft zijn meetresultaten geanalyseerd aan de hand van het bijna-

vrije-electronen model, en de meetresultaten van GP (zie tabel 3.2). Behalve de cyclotronmassa heeft K in enkele gevallen ook de golfvector \vec{k} rechtstreeks kunnen meten (zie § 4.2.3).

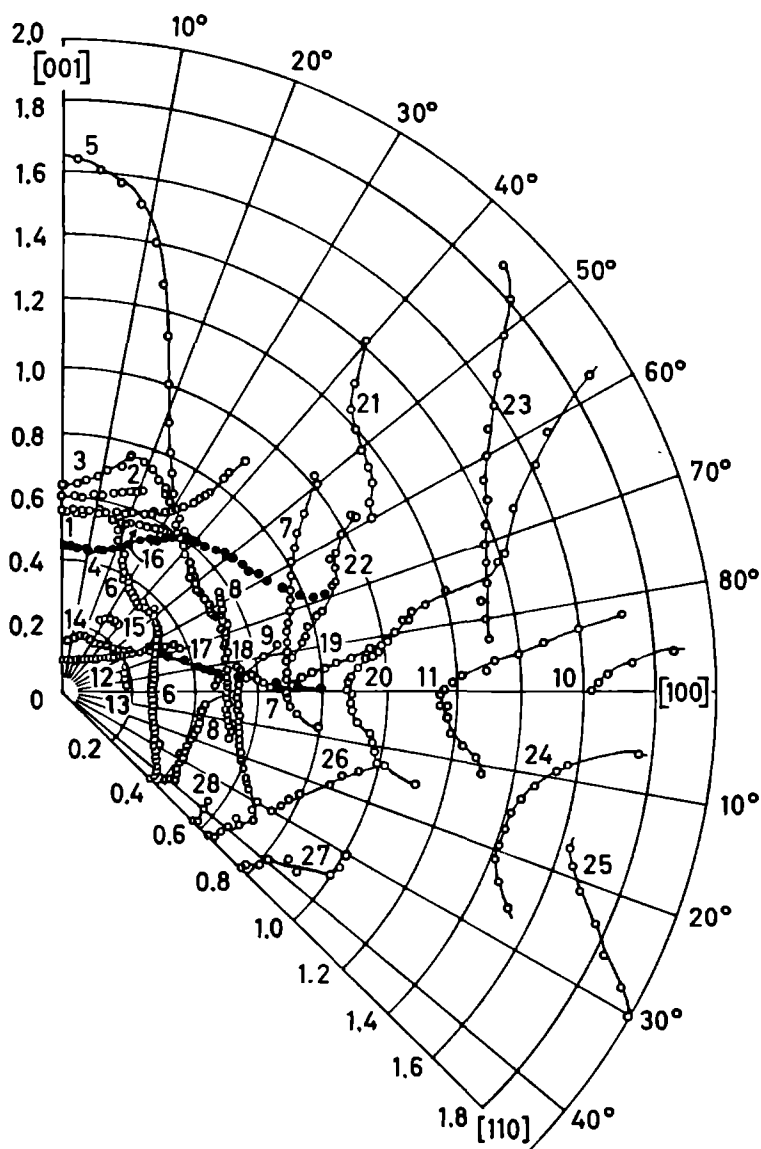


Fig.3.16. Metingen van Khaikin (1962a):
cyclotronmassa's, bepaald uit cyclotronresonantie.

3.3.4. Olsen

Olsen (1963) heeft extremale diameters van het FS van wit tin bepaald d.m.v. magneto-acoustische absorptie. Wanneer extremale electronbanen passen tussen twee isofasevlakken van een ultrageluidsgolf in het kristal, treedt een maximale of minimale absorptie op. De meetresultaten zijn samengevat in fig. 3.17. Het aantal door Olsen gemeten takken is aanmerkelijk kleiner dan dat van Khaikin, Gantmakher, en van ons.

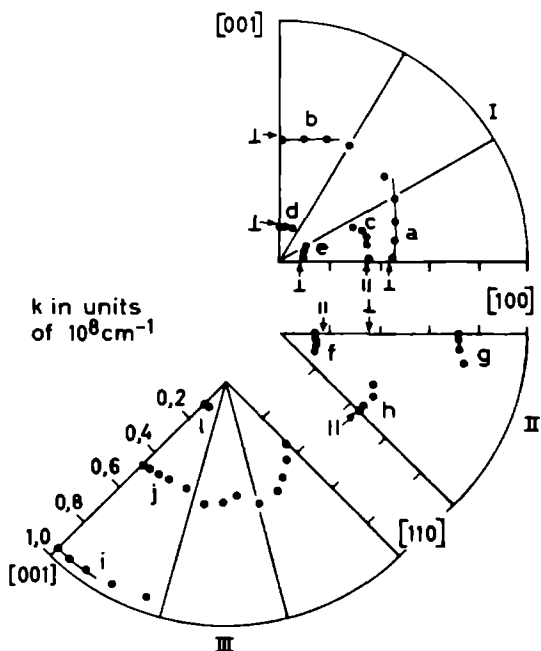


Fig.3.17. Metingen van Olsen (1963):
extremale diameters van het FS, bepaald uit acoustische resonantie.

3.3.5. Gantmakher

Gantmakher (1963, 1964) (G) heeft, evenals Olsen, diameters van het FS gemeten, zij het met een andere methode, n.l. die van de 'geometrische resonantie' of 'size-effect'. Wanneer extremale electronbanen passen tussen de evenwijdige oppervlakken van een dun, vlak, kristal-
lijn plaatje, treedt er resonantie op in de oppervlakteimpedantie van het kristal. De meetresultaten zijn samengevat in fig. 3.18, 3.19, en 3.20.

Zonder in te gaan op de mérites van G's methode, willen we opmerken, dat zijn meetresultaten niet steeds hoeven te corresponderen met

dHvA metingen. G meet niet alleen diameters van gesloten banen, maar ook van open banen (vgl. fig. 3.21d). Voorts meet G niet alle extremale diameters. Wanneer een doorsnede zowel een minimale als een maximale diameter heeft (zie b.v. fig. 3.21e), kan met G's methode alleen de maximale bepaald worden. Bij de methode van Olsen wordt de gemetendiameter bepaald door die gedeelten van de electronbaan, waarvan de raaklijn relatief langdurig evenwijdig is met de isofasevlakken van de ultrageluidsgolven in het kristal. In het voorbeeld van fig. 3.21e zal Olsen de minimale diameter $2q$ meten.

Door een gebrek aan theoretisch inzicht in de betekenis van de gemeten lijnvorm van de geometrische resonanties kunnen de resultaten een belangrijke, systematische fout vertonen (tot enkele procenten, vgl. Gantmakher, Krylov (1965)). Uit de metingen van Fukumoto en Strandberg (1966) betreffende de frequentieafhankelijkheid van de lijnvorm (in gallium) kan afgeleid worden, dat G's metingen systematisch te groot zijn.

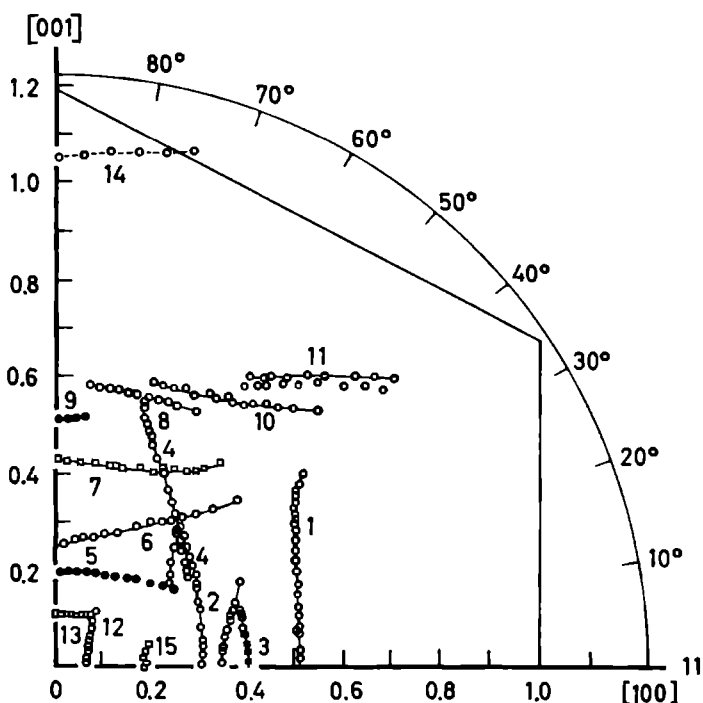


Fig.3.18. Metingen van Gantmakher (1963):
extremale diameters van het FS, bepaald uit geometrische resonantie.
De normaal op het preparaat is $\parallel [100]$. De eenheid is k_0 (zie § 4.1.1).

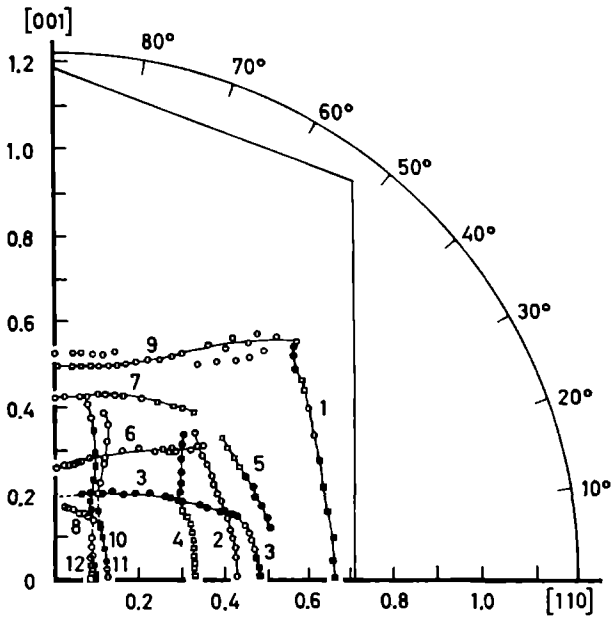


Fig.3.19. Metingen van Gantmakher (1963).
De normaal op het preparaat is $\parallel [110]$.

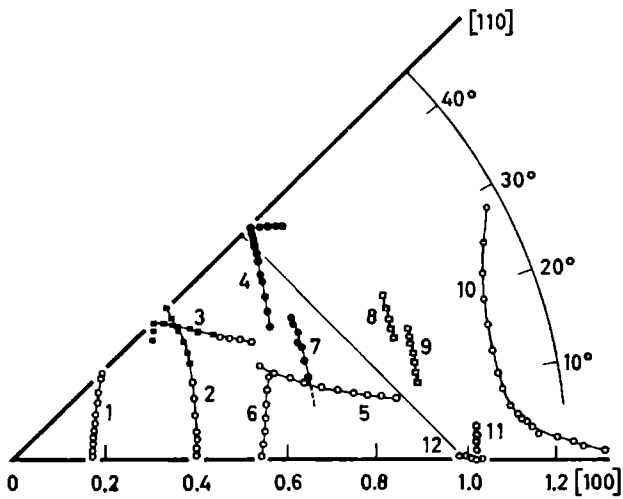


Fig.3.20. Metingen van Gantmakher (1964).
De normaal op het preparaat is $\parallel [001]$.

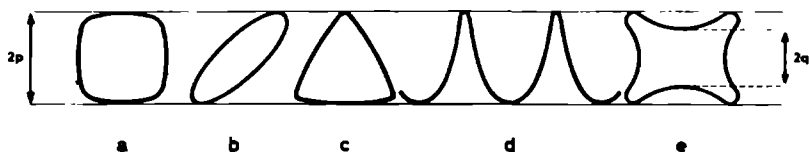


Fig.3.21. 'Diameters' van electronbanen op het FS, zoals die gemeten worden door Gantmakher en Olsen ($\vec{H} \perp$ vlak van tekening).

$2p$ is de dikte van het plaatje (bij Gantmakher), resp. een geheel veelvoud van de halve golflengte van de geluidsgolf (bij Olsen). In fig.3.21e bepaalt Olsen niet $2p$, maar $2q$. De banen in de \vec{k} -ruimte zijn gelijkvormig met de hier getekende in de \vec{r} -ruimte, maar 90° gedraaid om de \vec{H} richting.

Voorts zijn de kleine diameters bij G minder betrouwbaar dan de grote. De eerste worden n.l. bij lagere velden gevonden dan de laatste, en deze veldsterkten zijn zo laag, dat zij bij 1°K beneden de kritische veldsterkte liggen, waaronder wit tin supergeleidend wordt. De kleine diameters moeten dus bij hogere temperaturen gemeten worden. Dit, en het feit dat bij deze veldsterkten de 'achtergrond' meer stoort dan bij de hogere velden, en dat de calibratie extra moeilijkheden oplevert, maakt de meetresultaten van kleine diameters onzeker, en verklaart waarom Genkele resonanties niet gemeten heeft, die men op grond van de dHvA metingen zou verwachten.

De takken in G's figuren worden onderscheiden door een cijfer, met een onderindex, die de figuur aangeeft (1,2, en 3 resp. voor (100), (110), en (001); b.v. 4_2 is in fig. 3.19 te zoeken).

3.3.6. Andere publicaties

Alers (1957) vermeldt een meting van dHvA-achtige oscillaties in de elektrische en thermische magnetoweerstand (Shubnikov-de Haas effect), voor H langs [001]. De gemeten frequentie komt overeen met onze A oscillaties.

Ook *Bordoloi c.s.* (1965) vermelden oscillaties in de elektrische en thermische weerstand, de thermokracht, en in de Hall, Righi-Leduc, en Ettinghausen-Nernst effecten, met H langs [001] (zie § 1.4.3).

Young (1965) heeft evenals Alckseevskii c.s. de magnetoweerstand in tin gemeten. De metingen wijzen op het optreden van magnetic breakdown tussen de derde en vierde zone (zie § 4.2.6).

Van Baarle (1965) heeft zijn thermospanningsmetingen aan tin en tin-indium legeringen geïnterpreteerd aan de hand van een vereenvoudigde weergave van het FS. Interessant is de bewering, dat kleine segmenten van de Fermi-bol (begrensd door de Brillouinzonegrenzen, zie § 4.1)

overeenkomen met een klein aantal electronen, waarvan de relaxatietijd relatief klein is, zodat deze segmenten geen grote bijdrage leveren tot de geleiding (vgl. Klemens, Van Baarle, Gorter (1964)).

Hays en McLean (1965) hebben dHvA-achtige oscillaties gevonden bij een meting van 'helicon voortplanting', met frequenties, overeenkomend met onze A en B oscillaties.

Spong en Kip (1965) vermelden dHvA-achtige oscillaties in de oppervlakteimpedantie van tin, voor H langs [001], met een frequentie $F = 0,175$. Ze vermelden als bijzonderheid geen B oscillaties aangetroffen te hebben.

Koch en Kuo (1966) hebben bij lage veldsterkten oscillaties gevonden in de oppervlakteimpedantie voor H langs [001]. *Van Gelder* (1966) heeft deze oscillaties in verband gebracht met de 4ζ baan (zie § 4.2.3).

Reynolds c.s. (1966) hebben bij n.m.r. metingen een oscillerende veldafhankelijkheid in de Knight-shift gevonden. Bij H langs [001] vinden ze een frequentie $F \approx 0,25$, bij $\approx 15^\circ$ van [001] in (110) vinden ze $F \approx 0,3$. Ze zeggen dat deze waarden consistent zijn met de A oscillaties van GP, maar ook het gevolg kunnen zijn van een zweving van A en B oscillaties.

Kearny c.s. (1965) hebben het bestaan van open banen in tin aangetoond d.m.v. 'resonante absorptie' van ultrageluid.

Koch en Kip (1962) hebben evenals Khaikin cyclotronmassa's bepaald.

Lenham c.s. (1965) vermelden metingen van optische absorptie in tin.

Chambers (1952) heeft uit metingen van het anomale skin effect afgeleid, dat het totale oppervlak van het FS 43% van dat van de vrije-electronen Fermi-bol is (zie § 4.1).

4. INTERPRETATIE

Het is i.h.a. niet mogelijk uit dHvA en soortgelijke metingen de vorm van het FS direct te bepalen; als uitgangspunt van de interpretatie is een model nodig. Het is gebleken, dat (voor niet-overgangsmetalen) een goed model verkregen wordt, door de valentie-electronen als nagenoeg vrij te beschouwen. De energie wordt in hoofdzaak bepaald door de kinetische-energie operator, en de periodieke potentiaal is als een storing op te vatten.

In § 4.1 bespreken we eerst de Brillouinzone structuur en het bijna-vrije-electronen model (NFE) voor wit tin. Voorts vermelden we de berekening van Weisz (1966), die uitgaande van de metingen van Gantmakher (1963, 1964) de vorm van het FS bepaald heeft.

In § 4.2 vergelijken we onze meetresultaten met het NFE, met de meetresultaten van anderen (zie § 3.3), en met de berekening van Weisz.

In § 4.3 bediscussiëren we het resultaat van § 4.2, en gaan we na welke conclusies getrokken kunnen worden m.b.t. de bandenstructuur van wit tin.

4.1. Het bijna-vrije-electronen model voor wit tin

4.1.1. Tinparameters

De ruimtengroep van wit tin is $I 4_1/amd$, het Bravaisrooster is lichaamsgecentreerd tetragonaal, en er zijn twee atomen per eenheidscel (zie fig. 4.1). De kristalklasse is $4/mmm$. De atomen bevinden zich op de 4a posities van Wyckoff, met $\bar{4}2m$ als puntsymmetrie (zie International Tables for X-ray Crystallography (1952), p. 241v). De viertallige $[001]$ -as staat in de z-richting; $[100]$ en $[010]$ (resp. x- en y-as) zijn equivalente tweetallige assen, evenals $[110]$ en $[1\bar{1}0]$. Mase (1959), Miasek en Suffczynski (1961), Suffczynski (1961), en Miasek (1962, 1963, 1966) hebben de symmetrie-eigenschappen van wit tin groepentheoretisch geanalyseerd.

Als primitieve basisvectoren van het Bravaisrooster kunnen aange-

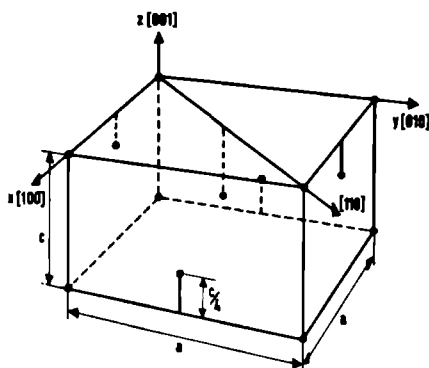


Fig.4.1. Kristalstructuur van wit tin.

wezen worden:

$$\vec{a}_1 = (-\frac{1}{2}a, \frac{1}{2}a, \frac{1}{2}c); \vec{a}_2 = (\frac{1}{2}a, -\frac{1}{2}a, \frac{1}{2}c); \vec{a}_3 = (\frac{1}{2}a, \frac{1}{2}a, -\frac{1}{2}c) \quad (4.1)$$

met $a = 5,80 \times 10^{-8} \text{cm}$, en $a/c = 1,84$, bij 4°K (Gantmakher (1963), Weisz (1966)). De positievectoren voor de twee atomen in de eenheids-cel zijn:

$$(0, 0, 0) \text{ en } \vec{\tau} = (0, \frac{1}{2}a, \frac{1}{4}c) \quad (4.2)$$

en de basisvectoren voor het reciproke rooster (zie fig. 4.2) zijn:

$$\vec{b}_1 = 2\pi(0, 1/a, 1/c), \vec{b}_2 = 2\pi(1/a, 0, 1/c), \vec{b}_3 = 2\pi(1/a, 1/a, 0) \quad (4.3)$$

zodat de reciproke-roostervectoren geschreven kunnen worden als:

$$\vec{K}_{m_1 m_2 m_3} = m_1 \vec{b}_1 + m_2 \vec{b}_2 + m_3 \vec{b}_3 \quad (4.4)$$

(m_1, m_2, m_3 zijn gehele getallen). De vectoren \vec{b}_i , gedefinieerd door (4.3) vormen geen orthogonaal coördinatenstelsel. Het is daarom gebruikelijk de reciproke-roostervectoren anders te definiëren dan door (4.4), n.l. door:

$$\vec{K}_n = \vec{K}_{n_1 n_2 n_3} = \frac{2\pi}{a} (n_1, n_2, n_3 a/c) \quad (4.5)$$

$$\text{met: } n_1 = m_2 + m_3; n_2 = m_1 + m_3; n_3 = m_1 + m_2 \quad (4.6)$$

of: $n_1 + n_2 + n_3 = \text{even}$

De primitieve of fundamentele Brillouinzone (BZ) is weergegeven in fig. 4.3. We zullen in het vervolg als lengte-eenheid in de \vec{k} -ruimte nemen:

$$k_0 = \Gamma L = 2\pi/a = 1,083 \times 10^8 \text{ cm}^{-1} \quad (4.7)$$

Uitgedrukt in deze eenheid zijn de voornaamste afmetingen van de BZ gegeven in tabel 4.1.

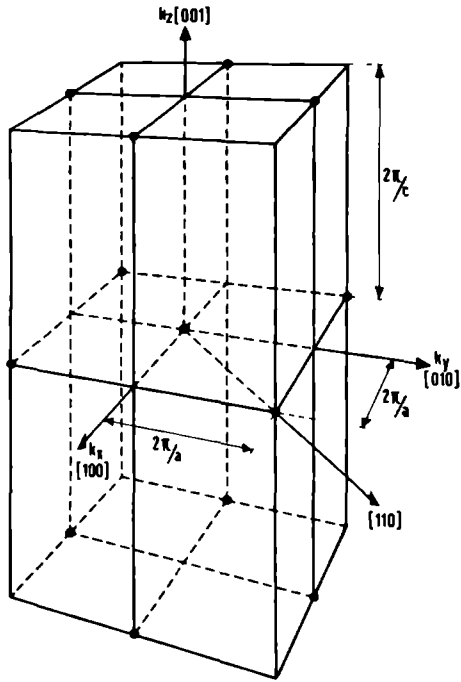


Fig.4.2. Reciproke rooster van wit tin.

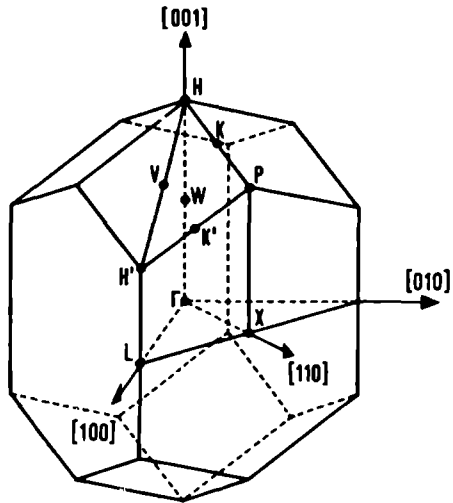


Fig.4.3. Primitieve Brillouinzone.

T a b e l 4.1
 Afmetingen van de primitieve Brillouinzone
 (eenheid: $k_0 = \frac{2\pi}{a} = \Gamma L$)

ΓL	1	1
$\Gamma X = LX$	$1/\sqrt{2}$	0,71
$\Gamma H = \Gamma H'$	$\frac{1}{2}(a/c + c/a)$	1,19
$\Gamma W = LH'$	$\frac{1}{2}(a/c - c/a)$	0,65
$\Gamma V = LV$	$\frac{1}{2}(a^2/c^2 + 1)^{\frac{1}{2}}$	1,05
ΓP	$\frac{1}{2}(a^2/c^2 + 2)^{\frac{1}{2}}$	1,16
$\Gamma K = \Gamma K'$	$\frac{1}{2}(a^2/c^2 + \frac{1}{4}c^2/a^2 + 3/2)^{\frac{1}{2}}$	1,11
WH	c/a	0,54
XP	$\frac{1}{2}a/c$	0,92
HP = HP' = = 2HK = 2PK'	$\frac{1}{2}(c^2/a^2 + 2)^{\frac{1}{2}}$	0,76
HH' = 2HV	$(c^2/a^2 + 1)^{\frac{1}{2}}$	1,14
PV	$\frac{1}{2}$	0,50

We merken op, dat de ruimtgroep van tin (I 4₁/amd) niet-symorf is, d.w.z. dat sommige elementen ervan niet-primitieve translatie $\vec{\tau}$ bevatten. Het reciproke rooster, de BZ, en het FS vertonen de symmetrie van de overeenkomstige symorfe ruimtgroep I 4/mmm.

Het volume van de BZ is:

$$\vec{b}_1 \cdot (\vec{b}_2 \wedge \vec{b}_3) = \frac{2a}{c} \left(\frac{2\pi}{a}\right)^3 \quad (4.8)$$

Daar tin vierwaardig is, per eenheidscel twee atomen, en dus acht geleidingselectronen telt, en het volume van de Fermi-bol gelijk is aan het aantal geleidingselectronen per eenheidscel maal de helft van het volume van de BZ, is het volume van de Fermi-bol:

$$\frac{8a}{c} \left(\frac{2\pi}{a}\right)^3 = \frac{4}{3} \pi k_F^3 \quad (4.9)$$

waarin k_F de straal van de Fermi-bol is; dus:

$$k_F = \sqrt[3]{\frac{6a}{\pi c}} \cdot \frac{2\pi}{a} = 1,52 k_0 \quad (4.10)$$

In § 1.2 hebben we het verband tussen de frequentie F van het dHvA, en het oppervlak A van de ermee corresponderende extremale doorsnede van het FS vermeld; als we A in eenheden k_0^2 uitdrukken, en F in 10^7 Gauss, dan geldt:

$$A = F \cdot 2\pi e / \hbar c = 0,0829 F \quad (4.11)$$

4.1.2. Het bijna-vrije-electronen model

Gold (1958) en Harrison (1959, 1960) hebben een methode ontwikkeld om op eenvoudige wijze een benadering te verkrijgen van de vorm van het FS. Het is gebleken dat het z.g. 'bijna-vrije-electronen model' (NFE) verrassend goed overeenkomt met metingen van FS parameters.

De constructie van het NFE berust op drie veronderstellingen:

- De geleidingselectronen vormen een Fermi-gas, d.w.z. dat de energie vnl. bestaat uit de kinetische energie.
- De periodieke potentiaal is effectief een zwakke storing, zodat electronen beschreven kunnen worden m.b.v. Blochfuncties, die (op een fasefactor na) invariant zijn onder translatie van de \vec{k} -ruimte over reciproke roostervectoren.
- De discontinuïteiten in de dispersierelatie $E = E(\vec{k})$ zijn gelocaliseerd op Brillouinzonegrenzen (BZB).

Men kannu als eerste stap om het centrum van de eerste (primitieve) BZ de Fermi-bol construeren. Elk deel van elke hogere zone wordt (als tweede stap) over een reciproke-roostervector \vec{K}_n verschoven, tot hij in de primitieve zone ligt. Dit kan slechts op één manier, en wel zo, dat na het 'reduceren' de hogere zone geheel samenvalt met de primitieve.

De delen van de Fermi-bol die in deze hogere zone lagen, zijn nu samengebracht in de primitieve zone, en vormen daar een oppervlak dat verre van bolvormig is. Men kan (als derde stap) de primitieve zone 'herhalen', tot het 'uitgebreide zoneschema'. Het zijn de diameters en doorsneden in dit schema, die in het dHvA en soortgelijke effecten een rol spelen.

Het reduceren van hogere zones is een tamelijk ingewikkeld werk, waarbij gemakkelijk vergissingen begaan kunnen worden. Harrison (1959, 1960) heeft een recept aangegeven, waardoor de constructie sterk vereenvoudigd wordt. Niet alleen om het centrum van de primitieve zone, maar om elk reciproke-roosterpunt construeert hij een Fermi-bol. Hij

merkt op, dat als een segment van één bol over een reciproke-rooster-vector verschoven wordt, het samenvalt met een overeenkomstig deel van een andere bol. De delen van het FS, die samen tot één zone behoren, worden daarom op verschillende plaatsen zichtbaar als doorsnidingen van twee of meer bollen. Een zeker punt ligt binnen het FS van de n-de zone, indien het binnen tenminste n bollen ligt.

Het NFE is niet alleen een model voor de vorm van het FS, ook de cyclotronmassa kan eruit berekend worden. De overeenstemming tussen het NFE en experimentele resultaten is echter voor de cyclotronmassa i.h.a. minder goed dan voor de vorm van het FS. Dit is het gevolg van electron-electron en electron-fonon interacties, die wel de cyclotronmassa, maar niet de vorm van het FS beïnvloeden (zie § 1.3).

4.1.3. Constructie van het NFE voor wit tin

Gold en Priestley (1960) (GP) hebben het FS voor wit tin op de boven aangegeven wijze geconstrueerd. Zij hebben hun figuren nogal sterk afgerond, en we geven daarom de voorkeur aan fig. 4.4, die we ontleen aan Gantmakher (1963).

In fig. 4.5 - 4.7 hebben wij doorsneden geconstrueerd, loodrecht op $[001]$, $[100]$, en $[110]$. GP hebben de extremale doorsneden, die met het dHvA corresponderen, aangegeven met een cijfer (het zone-nummer), gevolgd door een griekse letter. We zullen hun nomenclatuur waar nodig systematisch uitbreiden (zie fig. 4.4).

Volgens het NFE is de eerste zone geheel met electronen bezet, en de tweede op een kleine 'pocket' na, in de buurt van het punt W.

Ook de derde zone is bijna geheel met electronen bezet, op een open oppervlak na, dat in het uitgebreide zoneschema bestaat uit vier 'pilaren', acht 'steunbogen' en twee 'kroontjes' bij W. De pilaren vertonen ieder op zich geen viertallige symmetrie om de $[001]$ -richting, samen hebben ze wel de vereiste viertallige symmetrie. Hetzelfde geldt voor de steunbogen.

De vierde zone bestaat uit twee delen. De 4(a) zone wordt, in het uitgebreide zoneschema, gevormd door een aantal open 'cilinders' rond de LH' lijn, verbonden door een 'dak', ongeveer evenwijdig aan het (001) vlak. Uit fig. 4.4 en 4.7 blijkt dat het dak niet glad is. Behalve de centrale, maximale cilinderdoorsnede $\perp [001]$, de 4ζ baan, onderscheiden we een niet-centrale, minimale doorsnede 4σ . De 4(b) zone is een gesloten oppervlak, en wordt 'dubbele pannekoek' genoemd.

Ook de vijfde zone bestaat uit twee afzonderlijke delen. De 5(a) zone is een langgerekte 'sigaar', met een ongeveer vierkante doorsnede $\perp [001]$, en gecentreerd in T. De 5(b) zone is bijzonder gecompliceerd.

Hij bestaat uit grote 'peren', gecentreerd in H, of in het daarmee equivalentepunt H'. De peren zijn met elkaar verbonden door 'dubbele pannekoeken', op een manier die niet duidelijk blijkt uit fig. 4.6 en 4.7. Doorsneden door andere vlakken worden gegeven in § 4.2.4.

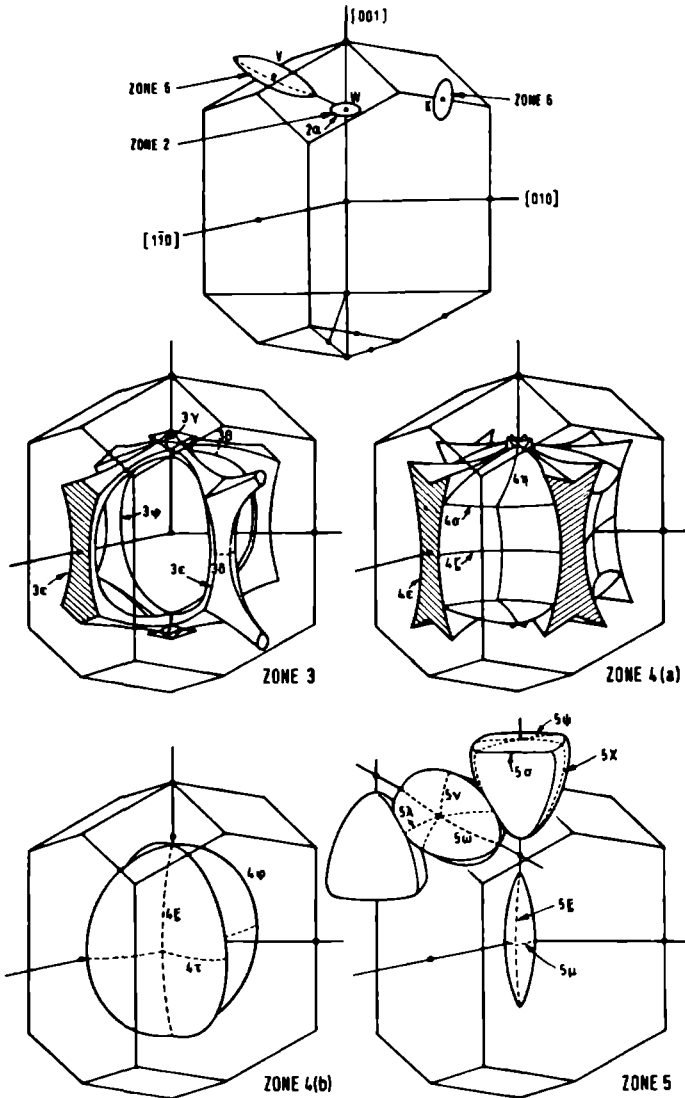


Fig.4.4. Het bijna-vrije-electronen model (NFE) voor wit tin (enigszins gewijzigd ontleend aan Gantmakher (1963)). Een aantal extremale electronbanen is met het zonenummer, gevolgd door een griekse letter aangegeven.

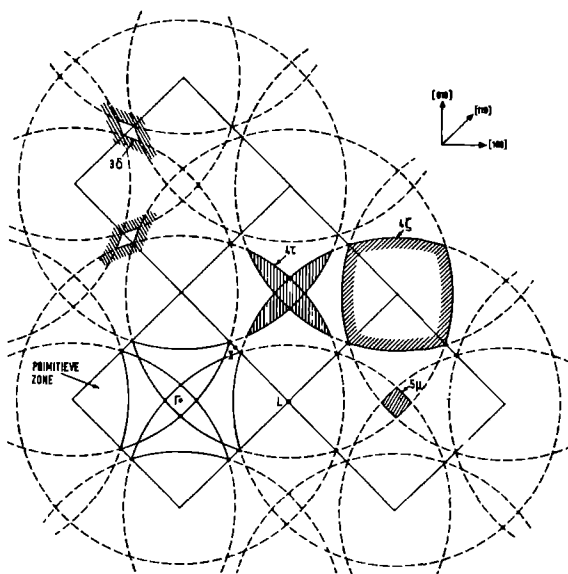


Fig.4.5. Het NFE, doorsneden $1[001]$.
 Voor elke extremale baan is door arcering aangegeven,
 aan welke zijde de electrontoestanden bezet zijn.

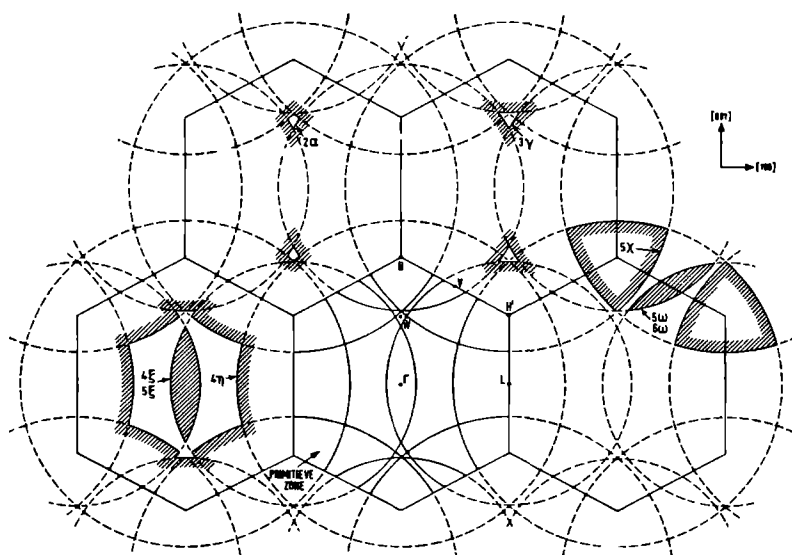


Fig.4.6. Het NFE, doorsneden $1[100]$.

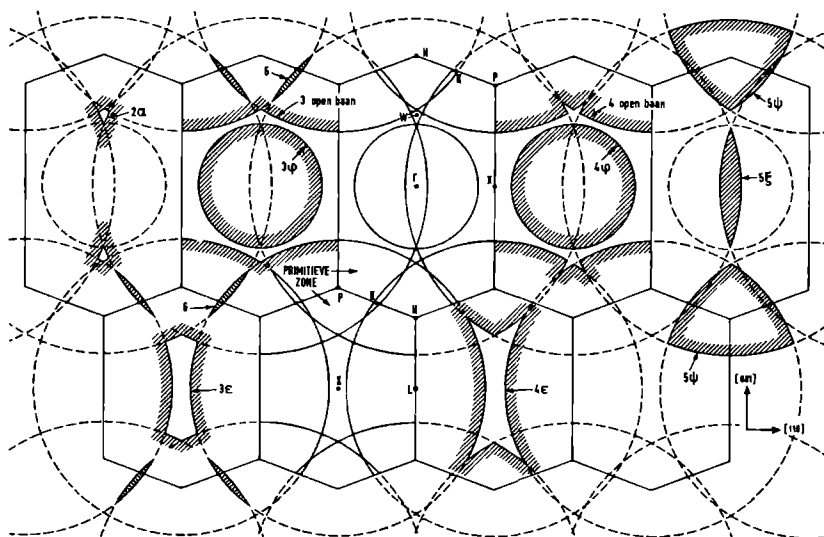


Fig.4.7. Het NFE, doorsneden 1[110].

T a b e l 4.2
Het bijna-vrije-electronen model (NFE)
(F in 10^7 Gauss)

	[001]			[100]			[110]	
	F	m_c/m		F	m_c/m		F	m_c/m
2α	0,17 ')	0,05 ')	2α	0,15 ')	0,055')	2α	0,15 ')	0,05 ')
3δ	0,24	0,061	3γ	0,18	0,083	3ε	2,3	0,2
4ζ	11,9	0,38	4η	13,3	0,42	3φ	10,6	1,0
4σ	10 ')	0,3	4ξ	2,65	0,32	4ε	3,1	0,2 ')
4τ	3,85	0,40	5ξ	2,65	0,32	4φ	10,6	1,0
5μ	0,54	0,089	5χ	5,5	0,28	5ξ	1,92	0,23
5σ	10 ')	0,3	5ω	1,25	0,50	5ψ	7,15	0,34
5λ	5,8	0,35	5ν	2,0	0,35			
6	div.		6	div.		6	div.	

') schatting

De zesde zone bevat twee soorten 'ellipsoiden', de ene gecentreerd in V, de andere in K en in het daarmee equivalente punt K'. Door hun lage symmetrie leveren ze in elke oriëntatie meerdere extremale doorsneden op.

In tabel 4.2 worden de doorsneden, loodrecht op de drie voornaamste symmetrieassen, de ermee corresponderende dHvA frequenties, en de cyclotronmassa's vermeld.

4.1.4. De roosterpotentiaal

Het NFE is blijkbaar gebaseerd op de veronderstelling, dat de electronendisversie (d.i. het verband tussen de energie E en de golfvector \vec{k}) nagenoeg die van vrije electronen is:

$$E = k^2 \quad (4.12)$$

of, wanneer we in het gereduceerde zoneschema \vec{k} alleen binnen de primitieve BZ beschouwen:

$$E = (\vec{k} + \vec{K}_n)^2 \quad (4.13)$$

(We kiezen in dit hoofdstuk als energie-eenheid: $\hbar^2 k_0^2 / 2m \approx 4,45$ eV $\approx 0,326$ Rydberg; $k_0 = 2\pi/a$).

De periodieke roosterpotentiaal V heeft volgens het NFE geen andere invloed, dan dat de BZ structuur tot stand komt. De energiediscontinuiteiten over de zonegrenzen worden geacht zo groot te zijn, dat de verdeling van de Fermi-bol over een aantal onderling afgescheiden zones tot stand kan komen, en tevens zo klein, dat de invloed op de vorm van het FS in elke zone beperkt blijft tot de afronding van scherpe hoeken.

Het gebleken succes van het NFE voor meerwaardige niet-overgangsmetalen betekent dan ook dat de invloed van de kristalroosterpotentiaal als een zwakke storing beschouwd kan worden. Het blijkt nu mogelijk te zijn voor zo'n potentiaal een model te ontwikkelen, dat een aantal aanpasbare parameters bevat, waarvan de numerieke waarde aan het experiment ontleend wordt. Deze z.g. pseudopotentiaal methode (waarop we in § 4.3 nader in zullen gaan) is met succes toegepast o.m. op aluminium (Ashcroft (1963)), en op lood (Anderson, Gold (1965)).

Voor wit tin heeft Miassek (1963) in essentie deze methode toegepast. Er werd maar één experimenteel gegeven gehanteerd (n.l. het door GP's metingen bevestigd geachte bestaan van de 5(a) zone bij T), en juist dit gegeven wordt door latere onderzoekers betwijfeld.

Op basis van Gantmakher's (1963, 1964) metingen heeft Weisz (1966) (W) het FS van wit tin opnieuw berekend. We hebben al in § 3.3.5 opgemerkt, dat Gantmakher's metingen niet zeer nauwkeurig zijn, zodat W's berekening in dezelfde mate onjuist kan zijn. In § 4.2 en 4.3 zullen we

zien, dat onze meetresultaten kwalitatief met W's berekening overeenstemmen, maar dat het mogelijk is in de berekening kwantitatieve correcties aan te brengen.

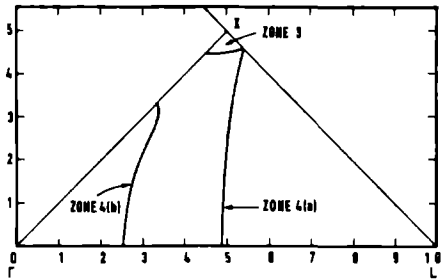


Fig.4.8. Doorsneden van het FS 1[001], volgens Weisz (1966) (W).

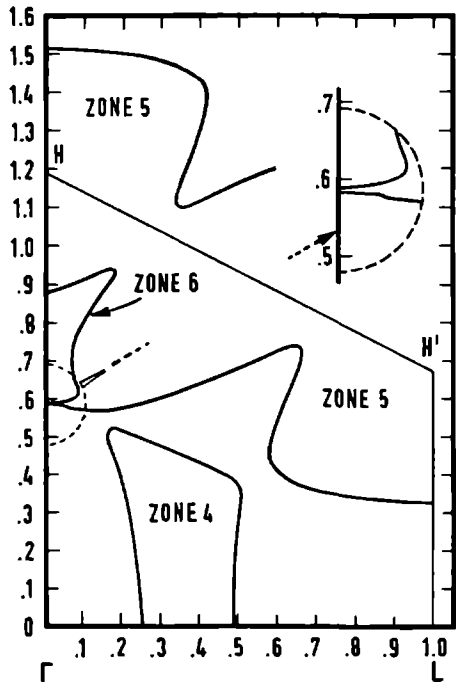


Fig.4.9. Doorsneden van het FS 1[100], volgens W.
 Inzet: detail van het FS nabij rH.

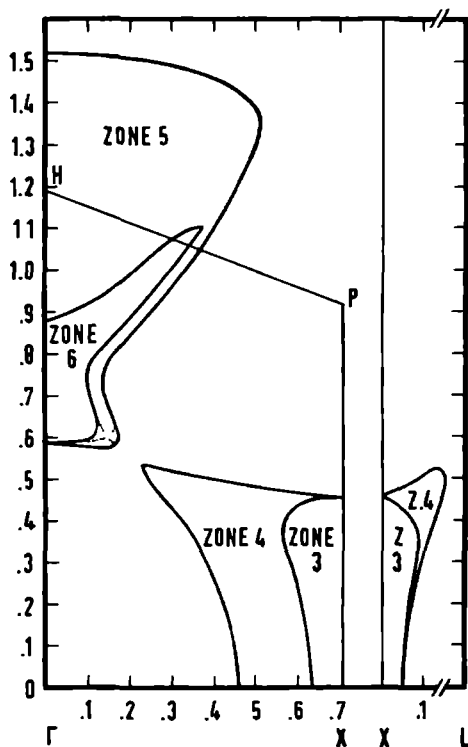


Fig.4.10. Doorsneden van het FS $1[110]$, volgens W.
De stippellijnen geven de berekende energieoppervlakken aan,
wanneer spin-baan koppeling verwaarloosd wordt.

In fig. 4.8 - 4.10 geven we de drie belangrijkste doorsneden, en in tabel 4.3 de door W berekende dHvA frequenties. Opvallende verschillen van W's model met het NFE zijn: de tweede zone is geheel bezet. De derde zone is gereduceerd tot de pilaren rond XP. De 4(a) en 4(b) zone zijn bij het punt W met elkaar verbonden, en vormen daar een 'nek'. De 5(a) zone bij Γ bestaat niet. In de 5(b) zone zijn de peren sterker met elkaar 'vergroeid' dan in het NFE; vergelijking van fig. 4.6 met fig. 4.9 laat zien, dat nu de vijfde zone langs de HVH' lijn geheel bezet is, zodat de 5X baan in W's model niet bestaat. De zesde zone ellipsoïden bij V bestaan niet, en die bij K zijn samengesmolten tot één 'pocket' van elektronen bij het punt W.

Voor meer details zie § 4.2.

T a b e l 4.3
dHvA frequenties, berekend door Weisz (1966) (W)
(F in 10^7 Gauss)

[001]		[100]		[110]	
$3\delta_1$	0,125	4, ooring	3,14	$3\epsilon_1$	1,35
$3\delta_2$	0,3	$4\eta'$)	$\approx 12,5$	$3\epsilon_2$	2,32
4τ	4,31	5ν	2,76	4ϵ	2,28
4, nek	1,57	6	0,70	4, Γ XP	8,77
4ζ	11,9			5ψ	$\approx 7,7$
5σ	8,13				
5λ	5,68				
6	0,28				
$6'$)	1,63				
') niet-centrale baan					

4.2. Interpretatie van de meetresultaten

4.2.1. We zullen in deze paragraaf telkens een zone van het FS vergelijken met de metingen, die besproken zijn in hoofdstuk 3, en met de bandberekening van Weisz.

We veronderstellen dat de eerste zone geheel bezet is, zoals ook het NFE aangeeft. Van de 'pockets' in de tweede zone is nooit iets waargenomen: er zijn geen meetresultaten, die daarmee in verband gebracht kunnen worden. In navolging van GP en van W, en vooruitlopend op de discussie in § 4.3 nemen we aan dat ook de tweede zone geheel bezet is.

In § 4.2.2 - 4.2.5 bespreken we achtereenvolgens de derde tot en met zesde zone. In § 4.2.6 komen de dan nog niet geïnterpreteerde oscillaties ter sprake, en vatten we § 4.2 samen.

4.2.2. Derde zone

Volgens het NFE bestaat de derde zone uit 'pilaren' bij X, die via 'steunbogen' verbonden zijn met het 'kroontje' bij W. Er zijn geen metingen die wijzen op het bestaan van de 3β banen. Reeds uit het NFE

blijkt, dat een betrekkelijk kleine energiediscontinuïteit over de zonegrenzen, die in het niet-gereduceerde zoneschema het dichtst bij dit deel van het FS komen, de verbinding tussen de pilaren en het kroontje zal verbreken. We komen hierop terug in § 4.3.4, waar we tevens zullen aantonen, dat ook het kroontje niet kan bestaan.

Evenals W nemen we daarom aan, dat het FS in de derde zone alleen bestaat uit de pilaren bij X. In § 3.2.1 hebben we vastgesteld, dat de A, B, en N oscillaties corresponderen met een haltervormig oppervlak, nagenoeg omwentelingsymmetrisch om de $[001]$ richting (zie fig. 3.9). Het is duidelijk, dat de derde zone pilaren met dit oppervlak overeenkomen.

In fig. 4.11 en 4.12 hebben we onze constructie vergeleken met de berekening van W, met G's meetresultaten, en met het NFE. In tabel 4.4 is een aantal numerieke gegevens verzameld.

T a b e l 4.4
Derde zone - interpretatie

		dHvA frequentie			cyclotronmassa			overeenk. lin.afm.	
H//	baan	NFE	W	S	NFE	GP')	K')	G	G''
[001]	3δ ₁	0,24	0,125	A 0,171	0,061	0,09	12: 0,10	12 _{1,112,122}	12 ₂
	3δ ₂	-	0,3	B 0,326	-	0,15	14: 0,16		10 _{2,112}
[100]	3γ	0,18	-	-	0,083	-	-		-
	3ε			N ₁ 1,55					
[110]	3ε ₁	2,3	1,35	N ₁ 1,68	0,2				
	3ε ₂	-	2,32		-				
	3φ	10,6	-	-	1,0	-	-		-
') volgens interpretatie S; '') volgens interpretatie W									

In het LXP vlak wijkt onze constructie weinig van het NFE af, behalve in de richting UH'. In het FXP vlak vertoont onze constructie daarentegen een belangrijke afwijking. We hebben in § 3.2.1 gezien, dat de zwevingen in de B oscillaties in (110) erop wijzen dat de $[001]$ richting (d.i. XP) voor dit deel van het FS geen viertallige, maar een tweetal-lige as is. Op grond van het NFE veronderstellen we, dat de doorsnede in het LXP vlak kleiner is dan die in het FXP vlak.

De berekening van W wijkt belangrijk af van onze constructie, vooral in het FXP vlak, en m.b.t. de vorm van de doorsneden $\perp [001]$. Volgens

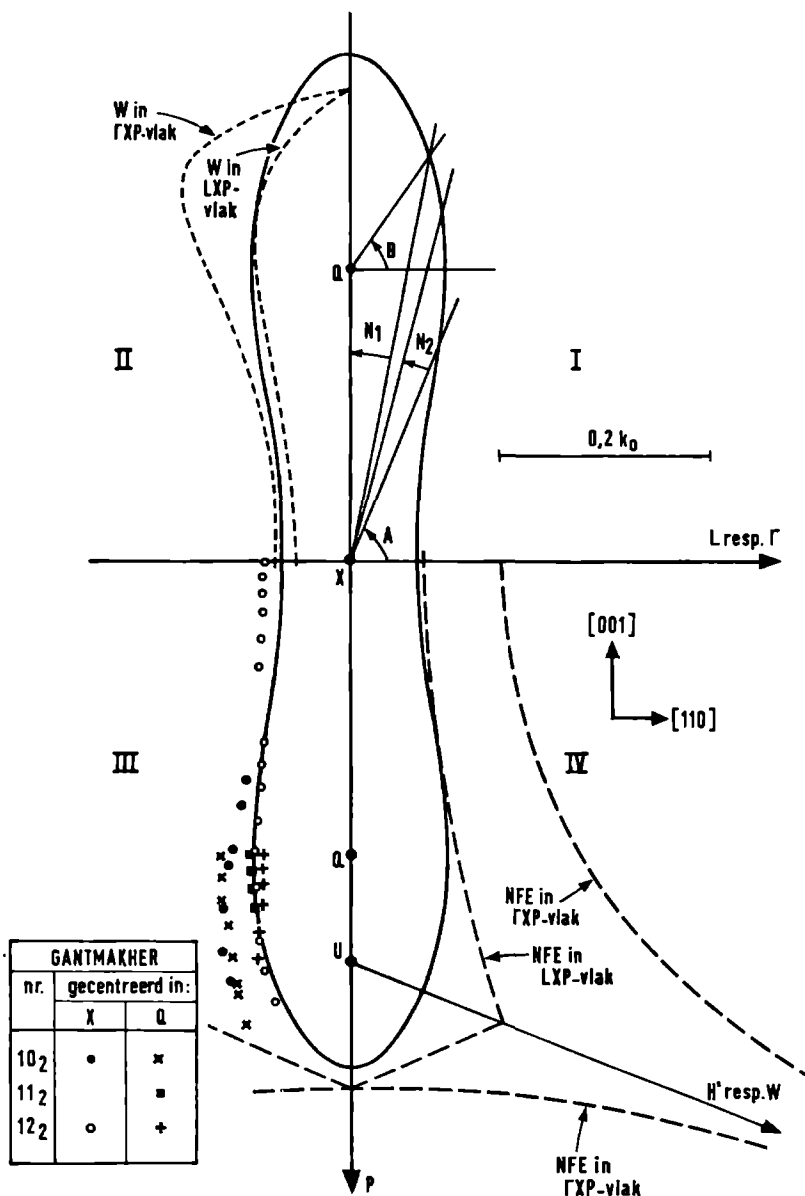


Fig.4.11. Derde zone, doorsneden $1[110]$.

In het eerste kwadrant is aangegeven over welke hoeken de A, B, en N oscillaties gemeten zijn (vgl. fig.3.9). In de andere kwadranten wordt onze constructie vergeleken met de berekening van W, met de metingen van G, en met het NFE.

het NFE zijn de doorsneden $\perp[001]$ voor $k_z \lesssim 0,3$ ruitvormig. Als dit ook in werkelijkheid zou gelden, zou de dHvA frequentie voor \vec{H} langs $[100] \approx 40\%$ kleiner zijn, dan voor \vec{H} langs $[110]$. In § 3.2.1 hebben we al opgemerkt dat de N_1 metingen voor deze twee richtingen niet meer dan 8% verschillen, zodat de werkelijke doorsneden dicht bij een cirkel zullen liggen dan bij een ruit.

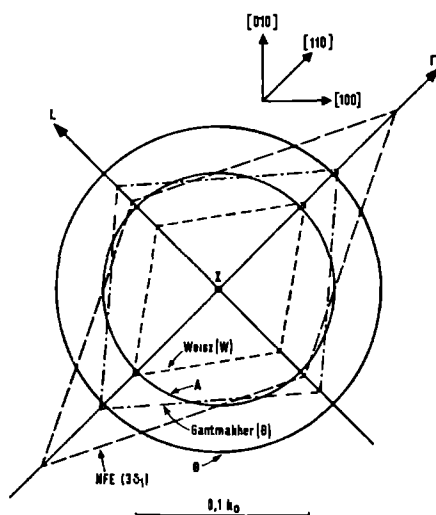


Fig.4.12. Derde zone, doorsneden $\perp[001]$.

G heeft zijn metingen 12_1 , 11_2 , en 12_2 , en mogelijk een deel van 10_2 in verband gebracht met de derde zone. Op grond van de gevonden waarden voor 12_1 , 11_2 , en 12_2 concludeert hij dat de centrale diameters in resp. de ΓX en LX richtingen niet gelijk zijn, en dat de centrale doorsnede $\perp[001]$ een ruit is (zie fig. 4.12) met oppervlak $0,0155k_0^2$, terwijl wij $0,0134k_0^2$ uit de A oscillaties berekenen. W interpreteert G's metingen 12_1 als behorend tot de zesde zone, en wij sluiten ons daarbij aan (zie § 4.2.5). 10_2 en 11_2 interpreteert W als resp. de grootste en kleinste diameters van de grootste, niet-centrale $3\delta_2$ baan, 12_2 als de grootste diameter van de kleinste, centrale $3\delta_1$ baan (deze banen corresponderen resp. met onze B en A oscillaties). Bij deze interpretatie - waar we ons bij aansluiten - wordt opnieuw verondersteld dat de doorsnede met ΓXP groter is dan die met LXP .

We hebben in fig. 4.11 verondersteld dat tak 11_2 , en gedeelten van tak 10_2 en 12_2 hun centrum hebben in Q ($QX \approx 0,275$), evenals onze B oscillaties (zie fig. 3.9); we merken op, dat dit alleen voor kleine hoeken

juist is, voor grotere hoeken zijn de met deze metingen corresponderende banen wellicht elders op XP gecentreerd. Voorts herinneren we eraan, dat voor kleindiameters van het FS G's metingen minder betrouwbaar zijn dan voor de grotere (zie § 3.3.5).

Khaikin (1962a) is de enige onderzoeker, die het werkelijke bestaan van de steunbogen aanneemt. Hij heeft zijn tak nr. 12 toegeschreven aan de $3\delta_1$ banen, in overeenstemming met de cyclotronmassameting van GP (zie § 3.1.3) en hij interpreteert zijn metingen 9 als 3ϵ banen. Hij kan de eerstgenoemde volgen tot 70° in (100) (vgl. het gedrag van de A oscillaties, fig. 3.6), en concludeert daaruit, dat de $3\delta_1$ banen boven 70° niet meer bestaan, door het optreden van de steunbogen. Hij berekent dan de afmetingen van de steunbogen, en de hoeken waarover de 3β banen gemeten moeten kunnen worden, en interpreteert op grond daarvan zijn metingen 2 en 8 als behorend bij de steunbogen. Het belangrijkste bezwaar tegen deze redenering is, dat genoemde takken ook op een andere manier verklaard kunnen worden: we zullen tak 2 aan de vijfde, en 8 en 9 aan de vierde zone toeschrijven. Er bestaat een goede overeenstemming tussen K's metingen 12 en 14 met GP's cyclotronmassametingen van de A en B oscillaties. Tak 14 gaat bij ongeveer 60° in (100) over in tak 12.

GP hebbende A oscillaties evenals wij als $3\delta_1$ banen geïnterpreteerd. Voorts interpreteerden zij B als 5μ en N als 4ϵ , terwijl zij de C oscillaties aan het kroontje (3γ) toeschreven. We zullen echter zien, dat de 5μ banen niet bestaan, dat de 4ϵ banen met H_3 overeenkomen, en de C oscillaties met de zesde zone.

We komen in § 4.3 op onze constructie terug. In tabel 4.11 worden enkele lineaire afmetingen van het FS opgegeven.

4.2.3. Vierde zone

De vierde zone bevat het meest onderzochte deel van het FS van tin. We zullen eerst de betreffende metingen en constructies bespreken, en vervolgens de dHvA oscillaties interpreteren. De fig. 4.17 - 4.20 geven doorsneden van het vierde zone FS, en in tabel 4.5 zijn enkele numerieke gegevens samengevat.

De eerste analyse is van Alekseevskii c.s. (1960), die uit hun magneto-weerstandsmetingen een model construeerden, zonder het NFE te kennen (zie § 3.3.2 en fig. 4.13). Toen Alekseevskii c.s. (1961) kennis namen van GP's weergave van het NFE, hebben zij hun metingen opnieuw geanalyseerd, hetgeen resulteerde in fig. 4.14, die beter met het NFE overeenstemt, en die van fig. 4.13 verschilt, doordat tussen de vier 'cilinders' daarvan er nog een verschijnt. We zullen in § 4.2.4 zien,

dat de metingen van Alekseevskii c.s. toch beter met fig. 4.13 overeenkomen.

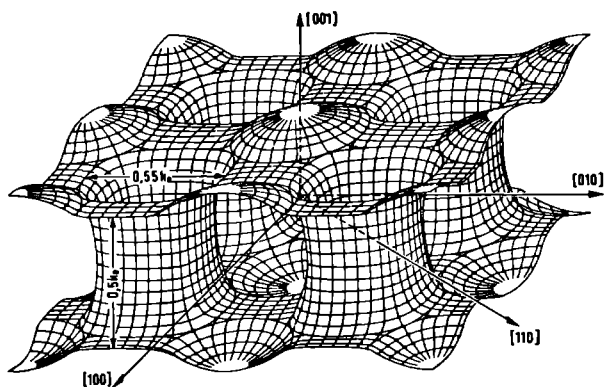


Fig.4.13. Constructie van het FS van wit tin volgens Alekseevskii c.s. (1960)

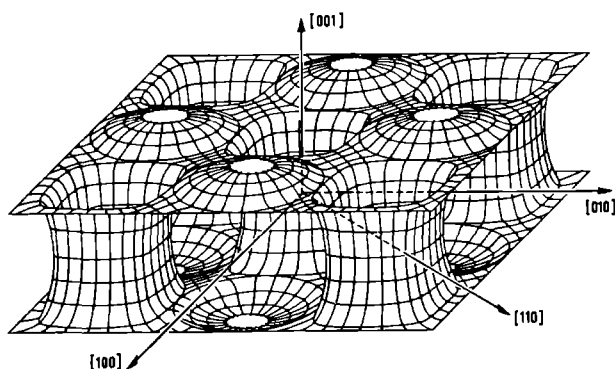


Fig.4.14. Herziene constructie van het FS van wit tin volgens Alekseevskii c.s. (1961).

Khaikin (1963) heeft een methode ontwikkeld, die in bepaalde gevallen (het is nog maar in één geval toegepast) het mogelijk maakt uit cyclotronresonantiemetingen lineaire afmetingen van het FS te bepalen. De methode bestaat hierin, dat beneden een bepaalde veldsterkte geen resonantie meer gemeten wordt, omdat de diameter van de bijbehorende baan (in de kristalroosterruimte) dan groter wordt dan de dikte van het preparaat. K heeft zo in (100) de diameters van de 4 ζ banen kunnen meten (zie fig. 4.17 en 4.18). Boven 37 $^{\circ}$ worden deze diameters niet meer gevonden.

T a b e l 4.5
Vierde zone - interpretatie

		dHvA frequentie			cyclotronmassa			overeenk. lin.afm.		
H//	baan	NFE	W	S	NFE	GP')	K')	G	G''	Olsen')
[001]	4 ζ	11,9	11,9	G ₁ 11,0	0,38	0,70	1:0,56	1 ₁ ,1 ₂	1 ₁ ,1 ₂	
	4 σ	10		G ₄ 10,5	0,3					
	4 τ	3,85	4,31	E 3,50	0,40	0,51	4:0,46	3 ₁ ,3 ₂	4 ₁ ,2 ₂	c(?)
	nek	-	1,57		-		5:1,65(?)		15 ₁	
[100]	4 η	13,3	\approx 12,5	M ₂ 11,8	0,42			9 ₁	9 ₁	
	4 ξ	2,65	-	-	0,32	-	-	5 ₁ ,2 ₃	-	-
	oorring	-	3,14	K ₁ 3,40	-	0,50	9:0,53		*)	f
[110]	4 ϵ	3,1	2,28	H ₃ 2,55	0,2			9 ₂ ,2 ₃	9 ₂	j
	4 ϕ	10,6	-	-	1,0	-	-		-	-
	FXP-vlak (klos)	-	8,77		-					

') volgens interpretatie S; ") volgens interpretatie W; *) 1₃ volgens S

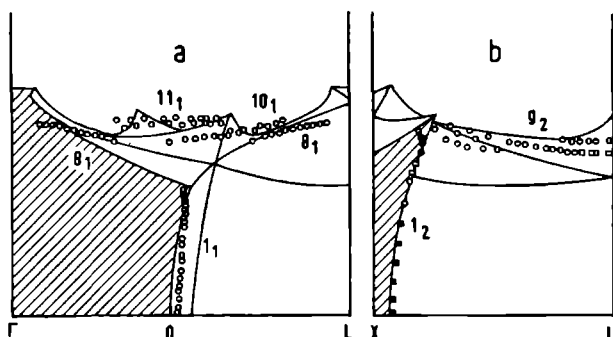


Fig.4.15. Gantmakher's (1963) interpretatie van een deel van zijn metingen aan de hand van het NFE voor de 4(a) zone.

De mogelijke extremale diameters zijn geprojecteerd op het vlak van tekening.

G schrijft zijn metingen 1₁, 8₁, 9₁, 10₁, 11₁, 1₂, 9₂, 6₃, en 10₃ aan de 4(a)zonetoe. De reconstructie wordt weergegeven in fig. 4.15; deze geeft de projecties op (100) resp. (110) aan van de diameters van verschillende doorsneden van het NFE. De bijbehorende banen zijn in fig.

4.16 schematisch aangegeven.

De 4(b) zone is volgens het NFE een gesloten oppervlak in de vorm van een 'dubbele pannekoek'. G interpreteert zijn metingen 3_1 , 5_1 , 3_2 , en 2_3 als representerend één gesloten oppervlak, en wel de 4(b) zone. Evenals W nemen we aan, dat deze interpretatie onjuist is.

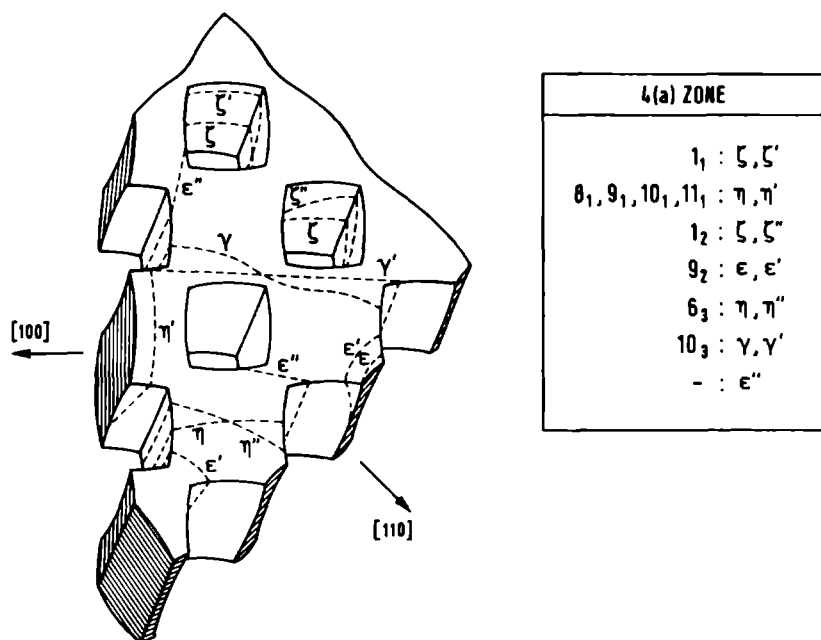


Fig.4.16. Schematische weergave van de mogelijke banen in de 4(a) zone, en de overeenkomstige size-effect metingen, volgens Gantmakher (1964).

Volgens W 's bandberekening is de vierde zone bij het punt W bezet, zodat de 4(a) en 4(b) zone, die volgens het NFE twee gescheiden oppervlakken vormen, in feite nabij W met elkaar verbonden zijn door een 'nek'. Zijn interpretatie van G's metingen verschilt niet van die van G zelf, voorzover het de metingen 1_1 , 1_2 , 9_2 , 6_3 , en 10_3 betreft. 3_1 , 5_1 , 11_1 , 3_2 , en 2_3 behoren volgens W tot de vijfde zone, 14_1 is tweemaal 9_1 , en 8_1 en 9_1 worden in verband gebracht met niet-centrale banen over het 'dak'. 4_1 is een niet-centrale diameter van de 4π banen (vgl. fig. 4.17 met fig. 3.21e). 2_2 is de centrale diameter van dezelfde banen in (110). 15_1 wordt aan de nek toegeschreven.

Olsen (1963) interpreteert een groot deel van zijn metingen als diameters van de vierde zone: a, b, c, d, g en j (zie § 3.3.4).

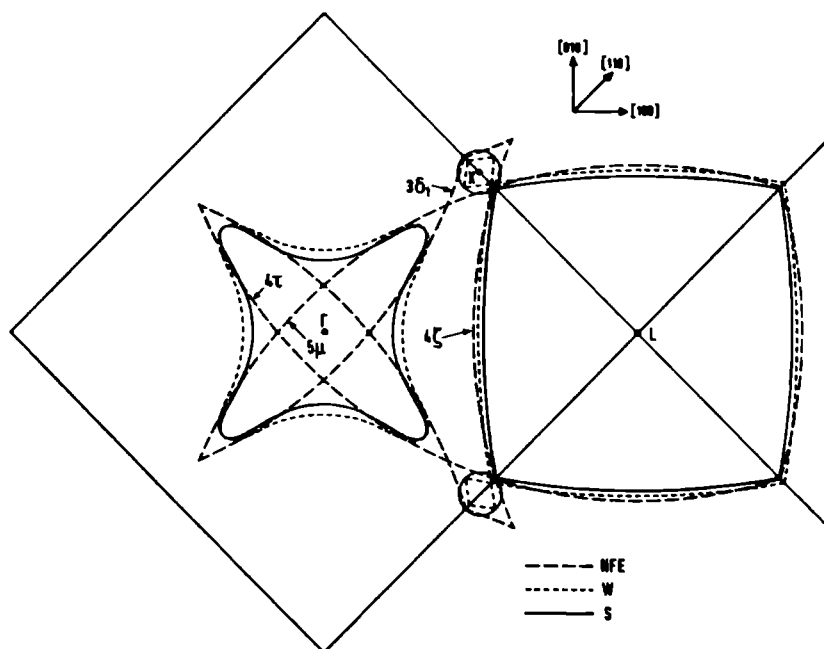


Fig.4.17. Vierde zone, doorsneden $1[001]$.

We komen nu tot de dHvA metingen. Evenals GP interpreteren we de G_1 oscillaties als de centrale cilinderdoorsnede 4ζ . Onze meting geeft een wat kleinere waarde dan het NFE en W (vgl. fig. 4.17). G_4 interpreteren we als de niet-centrale minimale 4σ baan op dezelfde cilinders. De G_1 oscillaties kunnen we in (100) volgen tot ongeveer 37° , in overeenstemming met de bevindingen van K en van G (zie fig. 4.18). In (110) kan G de 1_2 metingen volgen tot 46° . De H_3 oscillaties verbinden wij met de 4ϵ banen, in overeenstemming met de voorspelling van het NFE, dat deze bij $[110]$ een minimale waarde hebben als functie van de oriëntatie, zowel in (001) als in (110) . De gevonden waarde voor \bar{H} langs $[110]$ is kleiner dan die van het NFE, en wat groter dan wat W opgeeft. Uit de topologie van het FS (zie b.v. fig. 4.16) volgt dat we bij elke hoek of een 4ϵ baan, of een 4ζ baan moeten meten of beide. De G_3 oscillaties zijn dus het een of het ander. Uit G's metingen valt op te maken, dat het 4ζ banen zijn, die gedeeltelijk over het 'dak' lopen. De diameters 1_2 , tussen 38 en 46° , zouden dan geen centrale diameters zijn (zie fig. 4.20).

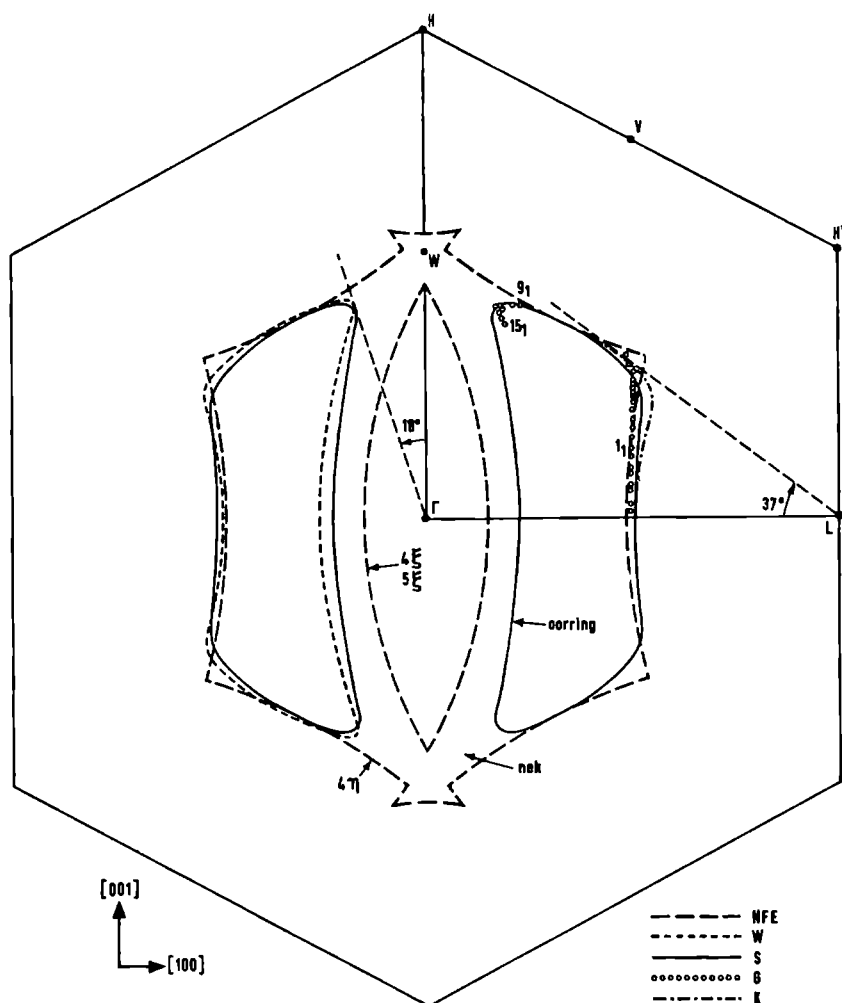


Fig.4.18. Vierde zone, doorsneden $\perp[100]$.

Evenals GP schrijven we onze E oscillaties aan de 4τ banen toe. In fig. 4.17 hebben we een doorsnede $\perp[001]$ geschetst, waarvan het oppervlak met onze E oscillaties overeenkomt. Onze constructie wijkt enigszins af van die van W, die een grotere dhvA frequentie opgeeft.

Onze K_1 oscillaties kunnen toegeschreven worden aan de 'oorring' (zie fig. 4.18), indien we het bestaan van de 'nek' aanvaarden. In § 3.2.3 hebben we opgemerkt dat in (100) K_1 alleen tussen 72° en 90° bestaat. Hieruit kan de opening van de nek geconstrueerd worden. W geeft voor

de ooring voor \vec{H} langs $[100]$ een kleinere dHvA frequentie op dan wij gemeten hebben.

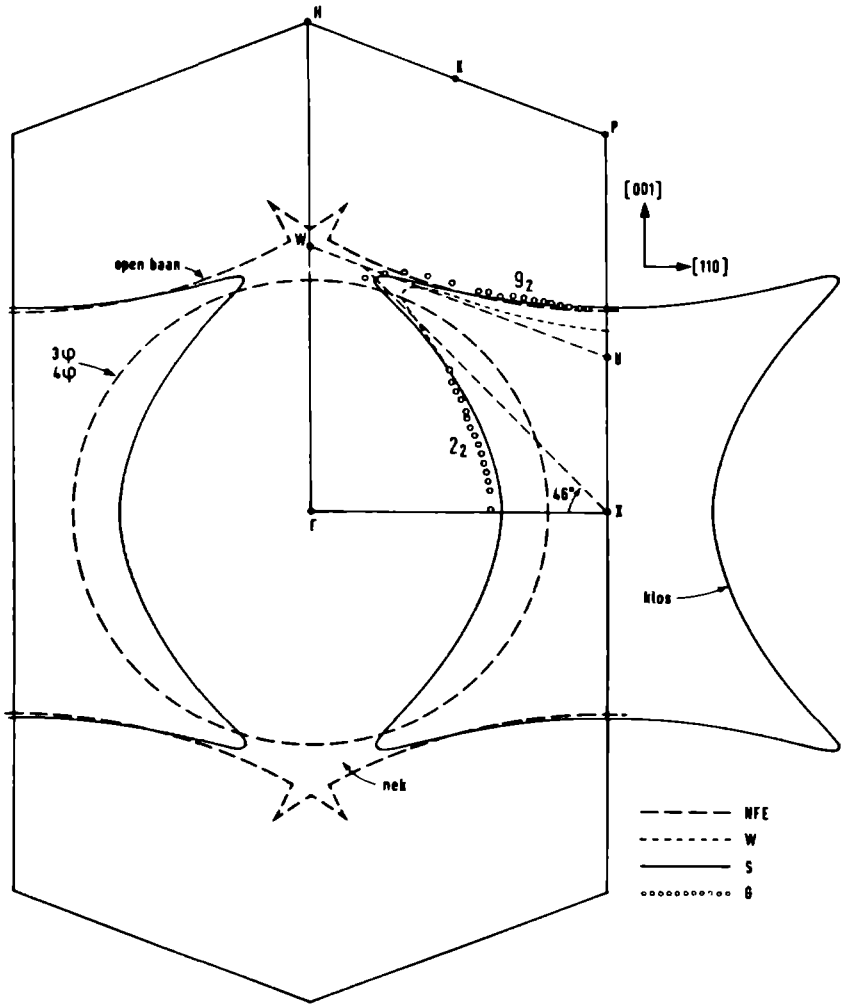


Fig.4.19. Vierde zone, doorsneden $\perp [110]$. Volgens W komen de 92 punten overeen met niet-centrale diameters, vgl. fig.4.20.

De doorsnede van het Γ XP vlak met de vierde zone (de 'klos', zie fig. 4.19) levert volgens W een dHvA frequentie $F = 8,77$ op; we hebben geen vergelijkbaar dHvA effect gevonden, maar uit het model blijkt wel, dat de 'klos' baan niet gunstig is voor een meetbaar effect.

Volgens W komt de nek overeen met $F = 1,57$ voor \vec{H} langs $[001]$. We hebben tussen de C_2 en de E oscillaties geen vergelijkbaar dHvA effect waargenomen, maar vooral uit fig. 4.19 blijkt dat de vorm van de nek niet gunstig is voor een meetbaar dHvA effect; in § 4.3.4 zullen we aantonen, dat ook de cyclotronmassa voor de nek vermoedelijk relatief groot is. Misschien komt K's meting 5 ermee overeen.

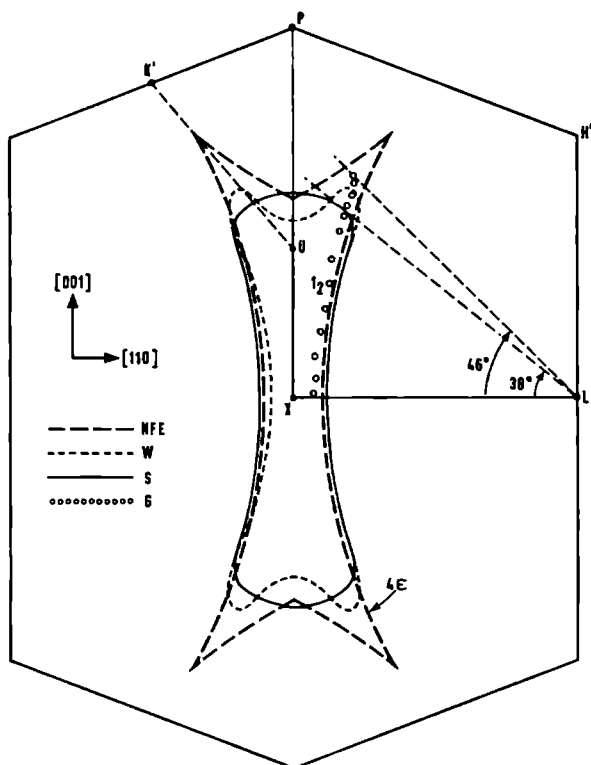


Fig.4.20. Vierde zone, doorsneden $\perp[110]$.

Uit het bestaan van de nek volgt dat de 4η banen voor \vec{H} nabij $[100]$ niet centraal zijn; we verbinden onze M_2 oscillaties met deze banen, en het amplitudeverloop in (100) (zie fig. 3.4 en 3.5) is hiermee in overeenstemming. GP interpreteerden hun M oscillaties op dezelfde manier, maar omdat ze M_1 en M_2 niet onderscheidden, kwamen ze tot een te lage waarde ($F = 9,2$) voor de doorsnede $\perp[100]$.

Ook nu volgt uit de topologie van het FS dat we in (100) bij elke hoek een 4ζ en/of een 4η baan moeten hebben. De M_2 oscillaties kunnen we volgen tussen 53 en 90° , G_1 tussen 0 en 37° . Tussen ongeveer 30 en

60° treffen we de G_2 oscillaties aan, die vermoedelijk op 4η banen betrekking hebben.

In § 4.3 zullen we nader aangeven, hoe we ons model, reeds weergegeven in fig. 4.17 - 4.20, geconstrueerd hebben. Een aantal lineaire afmetingen van het FS wordt gegeven in tabel 4.11.

We merken nog op, dat o.i. G's metingen l_3 , evenals Olsens metingen f , overeenkomen met de ooring. Uit de vorm van deze baan volgt, waarom G grotere waarden vindt dan Olsen (vgl. fig. 4.18 met fig. 3.21e). Uit G's g_1 metingen kan afgeleid worden, dat de nek-opening in het (110) vlak $\approx 13^\circ$ is (zie fig. 4.19). Hieruit leiden we een wat kleinere nekdiаметer af dan W.

4.2.4. Vijfde zone

Volgens het NFE bestaat de 5(a) zone uit een 'sigaar', gecentreerd in Γ , met een bijna vierkante doorsnede $\perp [001]$ en een min of meer ellipsoïdaal verloop in de richtingen loodrecht daarop. GP schrijven de B oscillaties aan dit deel van het FS toe, en stellen dat de 5ξ banen (met \vec{H} in (001)) geen sterke dHvA oscillaties op kunnen leveren. We hebben echter in § 4.2.2 een andere verklaring gevonden voor de B oscillaties, en we menen, evenals Weisz, dat de vijfde zone bij Γ leeg is. We komen hierop terug in § 4.3.4.

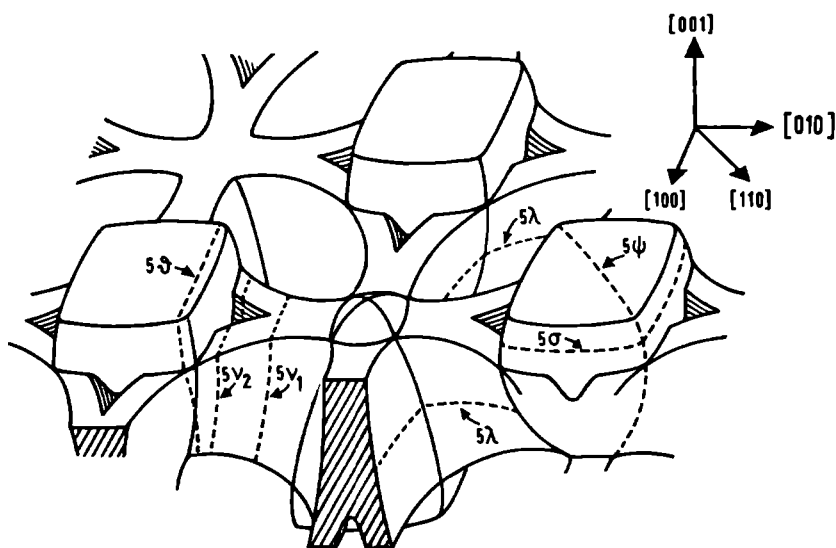


Fig.4.21. Schets van het vijfde zone FS.

Volgens het NFE bestaat de 5(b) zone uit 'peren', gecentreerd in H en H', verbonden door 'dubbele pannekoeken'. De fig. 4.22 - 4.26 geven een aantal doorsneden aan. Evenals W nemen we aan, dat de dubbele pannekoeken vergroeid zijn, zodat het 'gat' tussen H en V verdwenen is. We kunnen voorts wel aannemen dat de scherpe hoeken van de peren bij de 5 σ baan \perp [001] worden afgerond, en vooruitlopend op § 4.3.4 zullen we eveneens aannemen dat de 'punt' van de peren het punt W omvat. In fig. 4.21 is schematisch het zo verkregen FS getekend, en zijn de mogelijke extremale banen aangegeven. Voor enkele numerieke gegevens zie tabel 4.6.

T a b e l 4.6
Vijfde zone - interpretatie

		dHvA frequentie			cyclotronmassa			overeenk. lin.afm.		
H//	baan	NFE	W	S	NFE	GP')	K')	G	G''	Olsen')
[001]	5 μ	0,54	-	-	0,089	-	-		-	-
	5 σ	10	8,13	F ₂ 6,85	0,3		2: 0,60	2 _{1,22}	3 ₁	
	5 λ	5,8	5,68	F ₁ 5,4	0,35	0,64	3: 0,65		2 ₁	a(?)
[100]	5 ξ	2,65	-	-	0,32	-	-		-	-
	5 χ	5,5	-	-	0,28	-	-		-	-
	5 ω	1,25	-	-	0,50	-	-	7 ₁	-	-
	5 ν	2,0	2,76	H ₁ 2,08	0,35	0,45	8: 0,49		5 _{1,61}	b(?)
[110]	5 ξ	1,92	-	-	0,23	-	-		-	-
	5 ψ	7,15	\approx 7,7	L ₃ 6,85	0,34	0,75	27: 0,77	7 ₂	3 _{2,72,23}	h
') volgens interpretatie S; ' ') volgens interpretatie W										

Uit het NFE volgt dat de 5 σ baan in (100) kan bestaan van 0-18 $^{\circ}$, in (110) van 0-15 $^{\circ}$. In fig. 4.23 is aangegeven, dat een afgeronde 5 σ baan overeenkomt met onze F₂ oscillaties, die we resp. meten over 18 $^{\circ}$ en 16 $^{\circ}$ (zie § 3.2.3). W berekent voor de 5 σ baan een grotere dHvA frequentie dan wij gemeten hebben. Onze meting komt beter overeen met G's meting 2₃, die W evenals wij aan de 5 σ baan toeschrijft, maar die G als 4 τ baan interpreteert (zie § 4.2.3). Hetzelfde geldt voor 3₁ en 3₂.

In onze constructie bestaan de 5 χ banen niet. In plaats daarvan kunnen we over een klein hoekgebied nabij [100] in (100) (en niet in (001))

Uit de fig. 4.21 en 4.22 blijkt dat het oppervlak van de 5ψ banen bij $[110]$ een sterk minimum vertoont als functie van de oriëntatie in (001) , maar niet in (110) . E.e.a. komt goed overeen met onze L_3 oscillaties. W geeft voor de 5ψ baan bij $[110]$ een grotere dHvA frequentie op dan wij gemeten hebben. W brengt G's 7_2 tak in verband met deze banen (zie fig. 4.25)

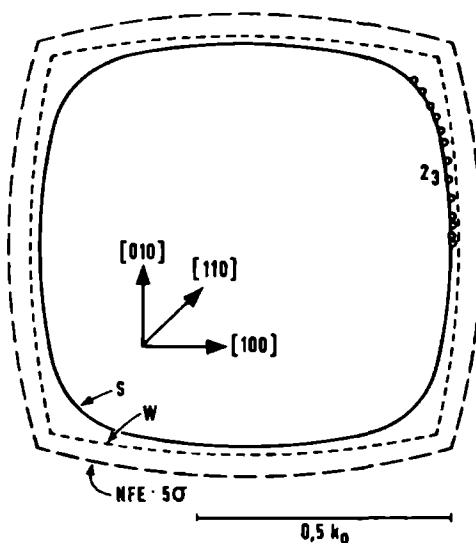


Fig.4.23. Vijfde zone, doorsneden $\perp [001]$.
Het middelpunt van de 5σ baan ligt bijna $0,4 k_0$ van L op LH' .

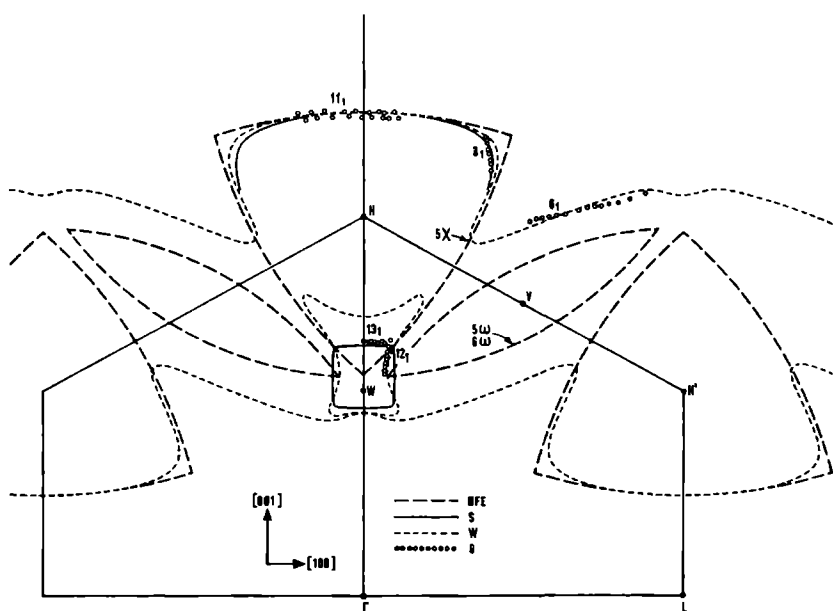


Fig.4.24. Vijfde en zesde zone, doorsneden $\perp [100]$.
De 6_1 punten komen overeen met niet-centrale diameters (vgl. fig.4.26),
en behoren, evenals de 11_1 punten bij banen, die in V gecentreerd zijn.

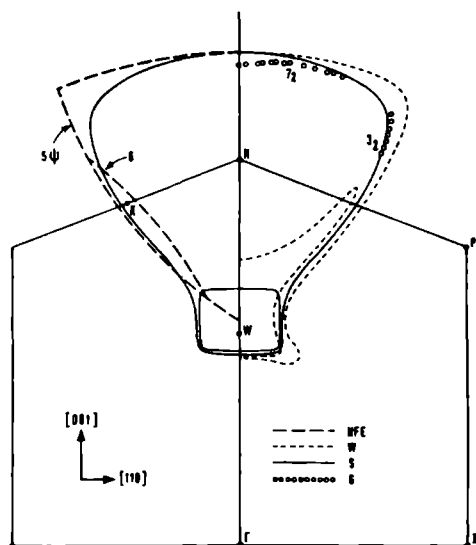


Fig.4.25. Vijfde en zesde zone, doorsneden $\perp[110]$.

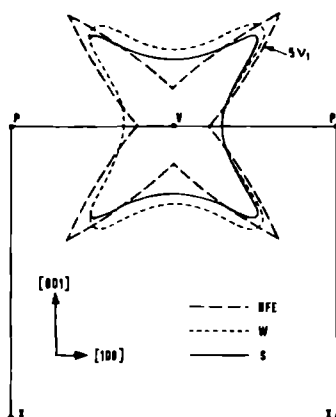


Fig.4.26. Vijfde zone, doorsneden $\perp[100]$.

Volgens het NFE zijn de 5λ banen in (100) bestaanbaar van 0 tot 61° (zie fig. 4.26), en, voorzover ze gecentreerd zijn in P , in (110) tot 17° . In fig. 4.22 hoeft de 5λ baan slechts weinig afgerond te worden om het oppervlak overeen te doen stemmen met onze F_1 oscillaties, die wij in (110) kunnen meten tot 16° , terwijl we in (100) F_1 goed kunnen volgen tot 45° . In W 's berekening heeft de 5λ baan voor \bar{H} langs $[001]$ ongeveer hetzelfde oppervlak als uit onze meting volgt. GP geven voor de

F_1 oscillaties bij $[001]$ als cyclotronmassa 0,64 op, hetgeen overeenkomt met K's metingen nr. 3. Deze vertonen een maximum bij $\approx 18^\circ$ in (100), hetgeen vergeleken kan worden met het minimum in de amplitude van onze F_1 oscillaties bij $\approx 15^\circ$ (zie fig. 3.4). W schrijft G's meting 2_1 aan deze banen toe.

De centrale $5v_1$ banen (d.w.z. gecentreerd in V) moeten vanwege de symmetrie in (100) twee verschillende takken, en in (001) één tak opleveren. Hieraan voldoen onze H_1 en H_2 oscillaties, indien we veronderstellen dat tussen ≈ 75 en 90° in (100) de twee takken niet te onderscheiden zijn. Het 'minimum' in de H_2 tak (zie fig. 3.14a), dan wel de tak H_4 (zie fig. 3.14b), kan echter door deze interpretatie niet verklaard worden. Indien de $5v_1$ baan maximaal is, moet er ook een niet-centrale, minimale $5v_2$ baan zijn (zie fig. 4.21). Hierdoor kan het verloop van de H oscillaties in (100) echter niet verklaard worden, zodat we aannemen, dat de $5v_1$ banen minimaal zijn, en er geen extremale $5v_2$ banen bestaan (dit in tegenstelling tot wat we vroeger verondersteld hebben, zie Stafleu, de Vroomen (1966)). W interpreteert G's 6_1 metingen als $5v_1$ banen (zie fig. 4.24), en berekent een grotere doorsnede, dan wij gemeten hebben.

Het is te verwachten, dat het vijfde zone FS veel resonanties in het size-effect op zal leveren. Behalve de reeds genoemde schrijft W G's metingen 5_1 , 11_1 , 6_2 , 3_3 , 5_3 , 9_3 , en 11_3 aan de vijfde zone toe.

In ons model bevat de vijfde zone veel meer open banen dan volgens het NFE het geval is. De open banen, die Alekseevskii c.s. gemeten hebben, en die toegeschreven werden aan de 4(a) zone, kunnen nu hun plaats in de 5(b) zone vinden. Het is opvallend, dat de topologie van de 5(b) zone meer overeenkomt met de eerste analyse van Alekseevskii c.s. (fig. 4.13), dan met de tweede (fig. 4.14).

In § 4.3 zullen we nog nader aangeven hoe we onze doorsneden in fig. 4.22 - 4.26 geconstrueerd hebben. Enkele lineaire afmetingen worden opgegeven in tabel 4.11.

4.2.5. Zesde zone

Het NFE geeft aan, dat zich in de zesde zone ellipsoïde-achtige oppervlakken bevinden, de grootste gecentreerd in V, de kleinere nabij K en K'. Vanwege hun symmetrie zouden deze oppervlakken aanleiding geven tot verschillende takken in alle drie de vlakken (100), (001), en (110). Geen van onze meetresultaten komt met deze ellipsoïden overeen, ook niet, die we nog niet geïnterpreteerd hebben.

Volgens W 's bandberekening komt er een 'pocket' van electronen rond W in de zesde zone, met 'horens' in de WK richtingen (zie fig.

4.9, 4.10, 4.24 en 4.25). We zullen in § 4.3.4 zien dat er reden bestaat voor de veronderstelling dat de horens in werkelijkheid niet zo gepro-
nonceerd zijn als uit W 's berekening volgt.

In § 3.2.2 hebben we aangetoond dat onze C_1 en C_2 oscillaties over-
eenkomen met een gesloten oppervlak in de vorm van een afgeronde
kubus. We identificeren dit oppervlak met de zesde zone 'pocket' bij
het punt W (zie fig. 4.24 en 4.25). In de BZ bevinden zich twee van deze
pockets, die t.o.v. het centrale (001) vlak gespiegeld zijn. Als gevolg
van de viertallige symmetrie van de TH lijn hebben deze twee opper-
vlakken bij elke oriëntatie van het magneetveld dezelfde extremale
doorsnede.

Evenals W menen we dat G's 12_1 en 13_1 metingen met dit deel van
het FS overeenkomen, maar we menen dat de 1_3 metingen ten onrechte
door W aan de zesde zone worden toegeschreven (zie § 4.2.3).

GP vinden voor de cyclotronmassa voor \bar{H} langs $[100]$ resp. $[110]$
0,26 en 0,34. Dit wijst erop dat K's metingen nr. 6 met de zesde zone
geïdentificeerd moeten worden, en niet met de 4(b) zone, zoals K vra-
genderwijs veronderstelt. Het verloop van de cyclotronmassa in (100),
te beginnen bij 90° , vertoont een maximum bij $\approx 50^\circ$ (evenals onze dHvA
frequentie), vervolgens een minimum bij $\approx 40^\circ$, en kan tussen 0 en 18°
niet gemeten worden.

Enkele numerieke gegevens zijn samengevat in tabel 4.7 en 4.11.

T a b e l 4.7							
Zesde zone - interpretatie							
	dHvA frequentie		cyclotronmassa		overeenk. lin.afm.		
H//	W	S	GP')	K')	G'')	G')	Olsen')
[001]	0,28	C_2 0,445			12_1	12_1	e
	1,63	-				-	-
[100]	0,70	C_1 0,440	0,26	6: 0,27	1_3	13_1	d
[110]		C_1 0,57	0,34	6: 0,37	1_3		l
') volgens interpretatie S; '') volgens interpretatie W							

4.2.6. Samenvatting van de interpretatie

We hebben in dit hoofdstuk een aantal takken nog niet vermeld. We

zullen, voorzover mogelijk, een interpretatie geven, die overeenkomt met onze constructie.

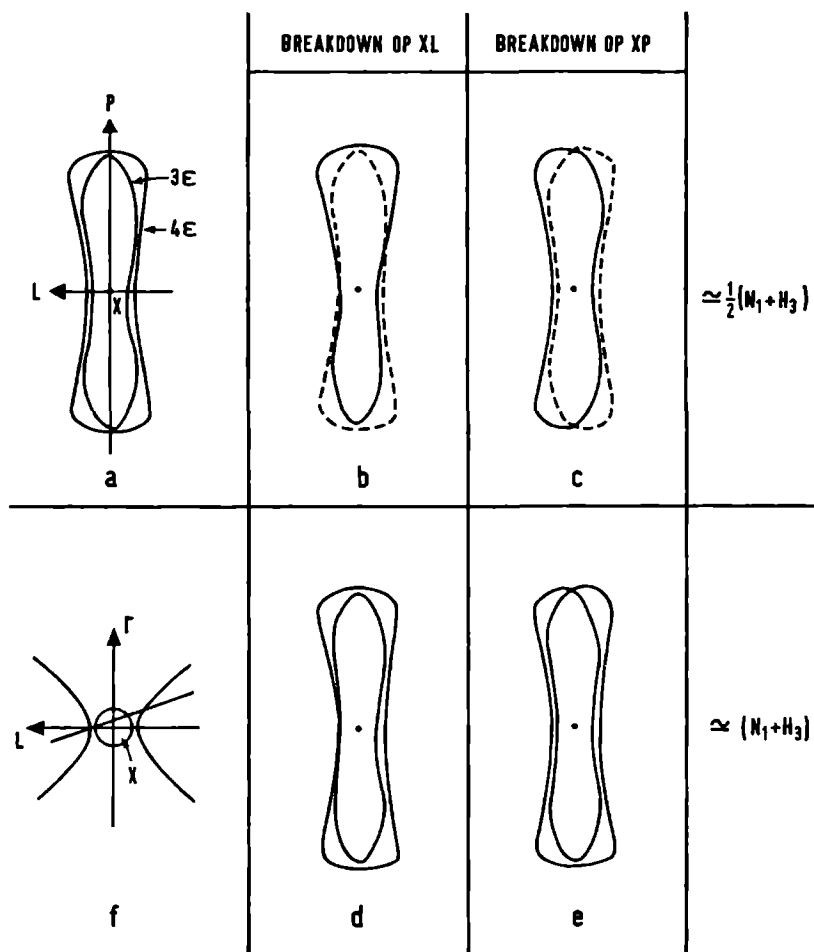


Fig.4.27. Typen van breakdown tussen de 3ε en 4ε banen (b - e).
a: zonder breakdown, f: niet-centrale baan, magnetveld in (001).

a. D_1, D_2, L_2 . Deze takken zijn al in § 3.2.2 en 3.2.3 geïnterpreteerd als tweede harmonischen van resp. C_1, C_2 , en K_1 .

b. K_3, K_4, K_5 . Magnetic breakdown kan verwacht worden, indien $\mu_B H \gtrsim (\Delta E)^2 / E_F$, waarin ΔE het energievverschil over een BZB is (zie b.v. Pippard (1962)). We zullen in § 4.3.3 toelichten, dat breakdown verwacht kan worden tussen de derde en vierde zone, en wel op de lijnen XP en XL, waar ΔE alleen bepaald wordt door spin-baan koppeling.

Volgens W kan reeds bij 4 kG breakdown verwacht worden, en Young (1965) interpreteert een deel van zijn magnetoweerstandsmetingen in die zin. De breakdown tussen $3\delta_1$ en 4ζ (voor \vec{H} langs $[001]$) levert volgens W een dHvA frequentie $F = 13,4$ op, die wij niet gemeten hebben.

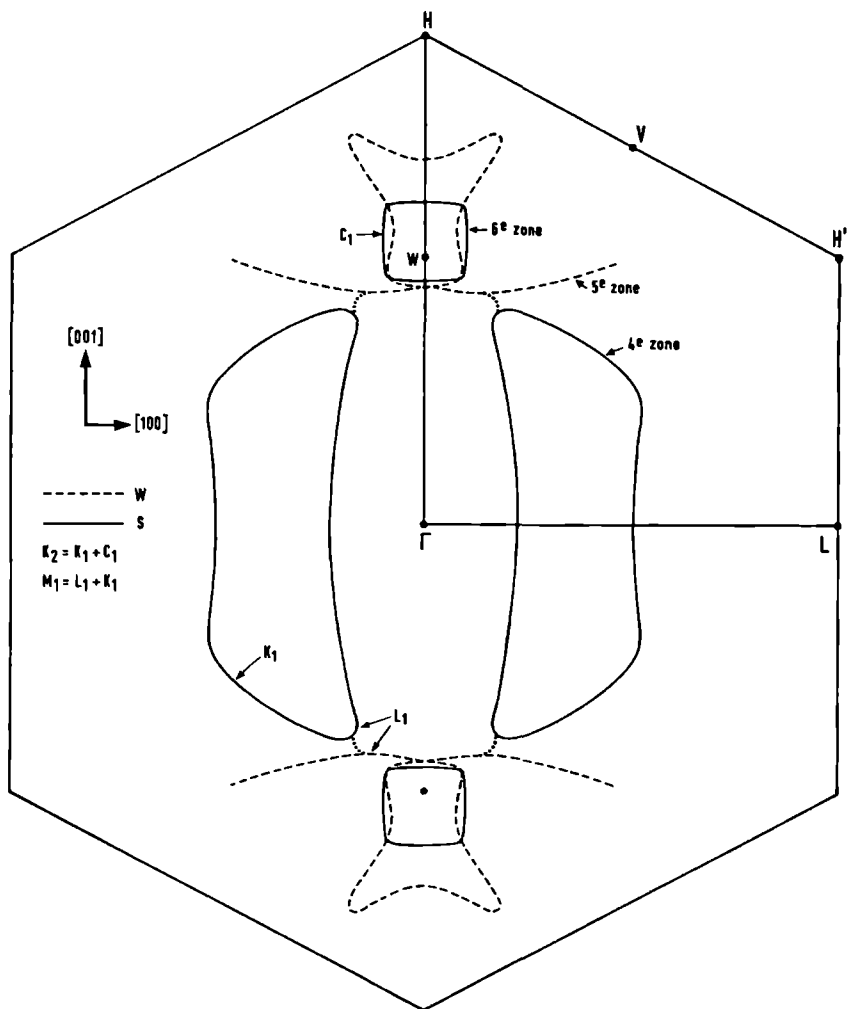


Fig.4.28. Breakdown tussen vierde, vijfde, en zesde zone nabij W, voor \vec{H} nabij $[100]$.

Indien het veld in de buurt van $[110]$ georiënteerd is, kunnen we verschillende typen breakdown verwachten, met globaal twee dHvA frequenties, n.l. $\frac{1}{2}(H_3 + N_1)$ en $(H_3 + N_1)$ (zie fig. 4.27). Het eerste geval

T a b e l 4.8
Samenvatting van de interpretatie

[001]		[100]		[110]	
A	3δ ₁	C ₁	6	C ₁	6
B	3δ ₂	D ₁	2C ₁	D ₁	2C ₁
C ₂	6	H ₁	5ν ₁	H ₃	4ε
E	4τ	K ₁	4, oorring	K ₃	mb: H ₃ + N ₁
F ₁	5λ	K ₂	mb: K ₁ + C ₁	L ₃	5ψ
F ₂	5σ	L ₁	mb	N ₁	3ε
G ₁	4ζ	L ₂	2K ₁		
G ₄	4σ	M ₁	mb: K ₁ + L ₁		
		M ₂	4η		
		N ₁	3ε		
(001)		(100)		(110)	
K ₄	mb: H ₃ + N ₁	C ₃	?	D ₂	2C ₂
		F ₃	?	D ₃	?
		G ₂	4η (?)	G ₃	4 ζ (?)
		H ₂	5ν ₁	K ₅	mb: H ₃ + N ₁
		L ₄	5θ	N ₂	3ε
		N ₃	3ε		
mb: magnetic breakdown					

levert een dHvA frequentie van 2,10 op, die we niet gemeten hebben, maardie vermoedelijk 'overstemd' wordt door de H₃ en N₁ oscillaties zelf. Het tweede levert een frequentie van $4,20 \pm 0,10$, terwijl we voor de zwakke K₃ oscillaties $4,35 \pm 0,05$ gevonden hebben. In dit geval is er sprake van 'self-intersecting orbits'.

De breakdown kan op twee punten plaats hebben, n.l. op de lijnen XL

en XP . K_3 komt overeen met breakdown op de XP lijn. Dit type kan in (110) niet gemeten worden. K_5 komt overeen met breakdown op XL ; dit type kan wel in (110), maar niet in (001) gemeten worden, tenzij het dan een niet-centrale doorsnede van beide zones betreft. Hiermee komt K_4 overeen.

c. K_2 , L_1 , M_1 . We zullen in § 4.3.4 zien dat de energieniveaus in de vierde, vijfde en zesde zone nabij W dicht bij elkaar liggen. Dit heeft tot gevolg dat ook hier magnetic breakdown op kan treden (zie fig. 4.28).

L_1 komt overeen met de centrale baan om Γ , tussen de twee 'oorringen'. Uit $M_1 \approx L_1 + K_1$ kan afgeleid worden, dat de zwakke M_1 oscillaties overeenkomen met een 'self-intersecting orbit' bestaande uit een ooring en een centrale L_1 baan. In § 3.2.3 hebben we er al op gewezen, dat binnen de grenzen van de meetnauwkeurigheid $K_2 = K_1 + C_1$. We hebben hier dan ook het unieke verschijnsel van breakdown tussen de vierde zone (ooring) en de zesde zone (pocket) via de vijfde zone.

d. C_3 , D_3 , F_3 . Voor deze takken hebben we geen verklaring.

e. Tenslotte vatten we onze interpretatie samen in tabel 4.8.

4.3. Discussie

4.3.1. We hebben in § 4.2 onze meetresultaten vergeleken met het NFE, en met het berekende model van Weisz, die zijn berekening gebaseerd heeft op de meetresultaten van Gantmakher. We hebben een goede kwalitatieve overeenstemming geconstateerd, maar kwantitatief zijn er belangrijke verschillen. We zullen in deze paragraaf aan de hand van een eerste-orde storingsrekening de vorm van het FS construeren.

In § 4.3.2 wordt de gang van zaken uiteengezet. In § 4.3.3 berekenen we uit onze meetresultaten de belangrijkste Fouriercomponenten van de roosterpotentiaal, en in § 4.3.4 gebruiken we de gevonden waarden om een aantal doorsneden van het FS te construeren, en de energieniveaus in enkele speciale punten uit te rekenen.

Met § 4.3.5 besluiten we dit hoofdstuk.

4.3.2. De pseudopotentiaal

In § 4.1.4 hebben we al opgemerkt, dat het succes van het NFE als eerste benadering van de electronendispersie in een metaalkristal impliceert, dat de roosterpotentiaal als een zwakke storing beschouwd kan worden. Het blijkt dat de attractiepotentiaal van de ionen voor een groot deel gecompenseerd wordt door een effectieve repulsiepotentiaal. Een uitvoerige discussie van deze 'pseudopotentiaal' wordt

gegeven door Harrison (1966).

De Schrödingervergelijking:

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \vec{\nabla}^2 \psi + V(\vec{r}) \psi = E \psi \quad (4.14)$$

wordt herschreven tot de pseudopotentialvergelijking:

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \vec{\nabla}^2 \varphi + W \varphi = E \varphi \quad (4.15)$$

ψ is een lineaire combinatie van OPW's (vlakke golven $|k\rangle$ die orthogonaal zijn met de ion-toestandsfuncties $|a\rangle$), en φ is een lineaire combinatie van vlakke golven:

$$\psi = \sum_k a_k (1 - P) |k\rangle = (1 - P) \varphi \quad (4.16a)$$

$$\varphi = \sum_k a_k |k\rangle = \sum_k a_k \exp. i \vec{k} \cdot \vec{r} \quad (4.16b)$$

$$\text{waarin: } P = \sum_a |a\rangle \langle a| \quad (4.16c)$$

een projectieoperator is. De pseudopotentialoperator W is niet-locaal, d.w.z. het is een integraal-operator. In goede benadering is het echter mogelijk W als een locale operator $V(\vec{r})$ op te vatten (zie Harrison (1966) 60 vv); (4.15) wordt dan formeel gelijk aan (4.14), maar met φ als toestandsfunctie:

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \vec{\nabla}^2 \varphi + V(\vec{r}) \varphi = E \varphi \quad (4.17)$$

We schrijven $V(\vec{r})$ als de som van de individuele ionpotentialen, gecentreerd op de ionposities \vec{r}_j :

$$V(\vec{r}) = \sum_{j=1}^N v(\vec{r} - \vec{r}_j) \quad (4.18)$$

(N is het aantal ionen). We ontwikkelen $V(\vec{r})$ in een Fourierreeks:

$$V(\vec{r}) = \sum_n V_n \exp. -i \vec{K}_n \cdot \vec{r} \quad (4.19)$$

$$\text{met } V_n = \frac{1}{N\Omega_0} \int V(\vec{r}) \exp. i \vec{K}_n \cdot \vec{r} d\vec{r} \quad (4.20)$$

($N\Omega_0$ is het volume van het kristal, de integratie geschiedt over het gehele kristal). Substitueren we (4.20) in (4.18), dan is:

$$V_n = S_n \cdot U_n \quad (4.21)$$

$$\text{met: } S_n = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N \exp. i \vec{K}_n \cdot \vec{r}_j \quad (4.22)$$

$$\text{en: } U_n = \frac{1}{\Omega_0} \int v(\vec{r} - \vec{r}_j) \exp. i \vec{K}_n \cdot (\vec{r} - \vec{r}_j) d(\vec{r} - \vec{r}_j) \quad (4.23)$$

S_n is de 'structuurfactor', die onafhankelijk is van $v(\vec{r} - \vec{r}_j)$.

In de 'vormfactor' U_n beperken we nu het integratiegebied tot de onmiddellijke omgeving van het ion: $v(\vec{r} - \vec{r}_j)$ wordt bolsymmetrisch verondersteld, zodat U reëel en onafhankelijk van de richting van \vec{k} is: $U = U(|\vec{k}|)$. Het blijkt mogelijk te zijn, uitgaande van de bekende toestandsfuncties $|\alpha\rangle$ van het vrije ion, $U(k)$ te berekenen. Dit is gedaan door Animalu en Heine (1965) voor een groot aantal metalen, w.o. tin (zie fig. 4.30).

De Fouriercomponent V_0 is onafhankelijk van \vec{k} en verschuift slechts de energie van alle toestanden met eenzelfde bedrag, inclusief de Fermi-energie E_F . We zullen het nulpunt van de energie schaal zo kiezen, dat $V_0 = 0$. E_F wordt nu bepaald door de eis, dat het volume, begrensd door het FS, gelijk is aan dat van de Fermibol van het NFE. We zullen echter aannemen dat E_F dezelfde waarde als in het NFE heeft.

Door nu (4.19) te substitueren in (4.17), deze achtereenvolgens te vermenigvuldigen met $\exp. i\vec{k} \cdot \vec{r}$ en met $\exp. i(\vec{k} + \vec{K}_n) \cdot \vec{r}$ voor elke \vec{K}_n , en telkens te integreren over het volume van het kristal krijgen we vergelijkingen voor de coëfficiënten a_k uit (4.16b); de 'seculaire determinant' voor deze vergelijkingen is:

$$\begin{vmatrix} T_0 & V_{n1} & V_{n2} & V_{n3} & \dots \\ V_{n1} & T_{n1} & V_{n1-n2} & V_{n1-n3} & \dots \\ V_{n2} & V_{n2-n1} & T_{n2} & V_{n2-n3} & \dots \end{vmatrix} = 0 \quad (4.24)$$

Hierin is $T_0 = E_0 - E$, $T_n = E_n - E$, $E_0 = k^2$, en $E_n = (\vec{k} - \vec{K}_n)^2$ (vgl. § 4.1.4).

De bijdrage van elke Fouriercomponent V_n tot (4.24) is in eerste benadering beperkt tot de punten in de \vec{k} -ruimte, gelegen op of in de buurt van de BZB, die het middelloodvlak is van de betreffende reciproke-roostervector \vec{K}_n , omdat in het NFE de energieniveaus op de BZB ont-aard zijn:

$$E_O = E_n \text{ of } T_O = T_n = T \quad (4.25)$$

In het eenvoudigste geval van een punt, gelegen op één BZB, en op enige afstand van alle andere, kan (4.24) dus vereenvoudigd worden tot:

$$\begin{vmatrix} T & V_n \\ V_n & T \end{vmatrix} = 0 \quad \text{of} \quad E = E_O \pm |V_n| \quad (4.26)$$

In het geval dat een punt op m BZB's ligt kan men op analoge wijze (4.24) beperken tot een determinant van de rang $(m + 1)$; als gevolg van de symmetrie kan men deze determinant (na enig manipuleren met de rijen en kolommen) reduceren tot determinanten van ten hoogste de rang twee.

Deze procedure komt erop neer, dat we in een aantal punten eerste-orde storingsrekening toepassen op energieniveaus, die in het NFE ont-aard zijn. We bepalen de snijpunten van het FS met enkele bijzondere lijnen in de BZ. De corresponderende \bar{k} levert E_O , en uit $E = E_F$ kunnen we $|V_n|$ en dus U_n bepalen. M.b.v. de V_n 's kunnen we nu omgekeerd het snijpunt van het FS met andere lijnen bepalen, en door grafische interpolatie doorsneden van het FS construeren, zodanig, dat hun oppervlak overeenkomt met de gemeten dHvA frequenties.

We zullen onze berekening vergelijken met die van Weisz (1966), die dezelfde procedure (maar nu uitgaande van de meetresultaten van Gantmakher (1963, 1964)) heeft gevolgd. Hij heeft echter een tweede-orde storingsrekening toegepast, door een 50×50 determinant uit te rekenen voor een groot aantal punten van de BZ. In deze determinant komen niet alleen de in tabel 4.9 vermelde U_n 's, en U_{110} en U_{310} voor (waarvoor $S_{110} = S_{310} = 0$), maar ook andere, zoals U_{301} , U_{400} , en U_{112} (waarvan de bijbehorende BZB de vrije-electronen Fermi-bol niet snijden). Volgens de 'modelpotentiaal' van Animalu en Heine (1965) kunnen de laatste niet verwaarloosd worden; Weisz heeft ze niettemin nul verondersteld, om voor zijn 50×50 determinant convergentie te bereiken. Hij rechtvaardigt dit, door erop te wijzen, dat de modelpotentiaal van Animalu en Heine, zelfs als deze correct is, niet de meest geschikte is voor bandberekening (G. Weisz, privé mededeling). De pseudopotentiaal is n.l. niet eenduidig te definiëren, d.w.z. dat er verschillende geldige formuleringen bestaan. Indien men de toestandsfuncties en eigenwaarden exact zou berekenen, leverden de verschillende formuleringen dezelfde waarden op. Wanneer men echter niet verder gaat dan eerste- of tweede-orde storingsrekening, dan is de keuze van de pseudopotentiaal mede bepalend voor de uitkomst van de berekening (zie b.v. Harrison (1966),

11 vv), In onze eerste-orde storingsrekening blijven de U_n 's, waarvoor $K_n/2k_F > 1$, onbepaald. E.e.a. betekent dat de in tabel 4.9 vermelde berekeningen moeilijk met elkaar vergeleken kunnen worden.

Weisz heeft ook de spin-baan koppeling in zijn berekening betrokken. Uit zijn berekening volgt, dat de invloed van de spin-baan koppeling gering is, hetgeen rechtvaardigt dat wij deze verwaarloosd hebben.

We merken nog op, dat Weisz niet alleen de U_n 's als aanpasbare parameters hanteert, maar ook de Fermi-energie E_F , waarvoor hij 2,24 opgeeft. In onze berekening moeten wij voor E_F de NFE waarde 2,31 aannemen. In verband daarmee hebben we in tabel 4.10 (zie § 4.3.4) ter vergelijking van onze en Weisz' resultaten niet alleen E , maar ook $E - E_F$ opgenomen.

4.3.3. Berekening van V_{200} , V_{220} , V_{101} , en V_{211}

In § 4.2.2 hebben we de vorm van het derde zone FS vastgesteld als een 'halter', nagenoeg omwentelingsymmetrisch om XP. We zullen de afwijking van de omwentelingsymmetrie verwaarlozen, en enkele punten op het FS (waar $E = E_F = 2,31$) nader beschouwen.

Fig. 4.29 geeft de doorsnede van het Γ XL vlak met het FS in het niet-gereduceerde zoneschema. Op de Γ X lijn (niet nabij X of Γ) is de energie van de derde zone $E = E_0 - |V_{220}|$. Uit § 4.2.2 (zie ook tabel 4.11) blijkt dat het FS Γ X snijdt op een afstand 0,065 van X, waar $E_0 = 2,41$, zodat $|V_{220}| = 0,10$.

Op de XL lijn (niet nabij X of L) is $E = E_0 - |V_{110}| = E_0$, daar $S_{110} = 0$. Het FS snijdt XL op 0,065 van X, waar $E_0 = 2,32$, zodat er blijkbaar (t.g.v. spin-baan koppeling) een energiesprong van $\approx 0,01$ is. Weisz geeft op, dat door spin-baan koppeling de energieniveaus van de derde en vierde zone op XL 0,004 verschillen, hetgeen met ons resultaat overeenkomt.

In het niet-gereduceerde zoneschema ligt het punt U op (0,50; 1,50; 0,38). De lijn UH' (niet nabij U of H') is de snijlijn van het $(\bar{1}10)$ en het (011) vlak, zodat de determinant (voor de derde, vierde en vijfde zone) is:

$$\begin{vmatrix} T & V_{1\bar{1}0} & V_{0\bar{1}\bar{1}} \\ V_{\bar{1}10} & T & V_{\bar{1}0\bar{1}} \\ V_{011} & V_{101} & T \end{vmatrix} = 0 \quad (4.27)$$

met als oplossingen ($S_{110} = 0$): $T_1 = 0$, $T_{2,3} = \pm \sqrt{2}|V_{101}|$. Voor het snijpunt van UH' met het derde zone FS (zie fig. 4.11) is $E_0 = 2,48$, zo-

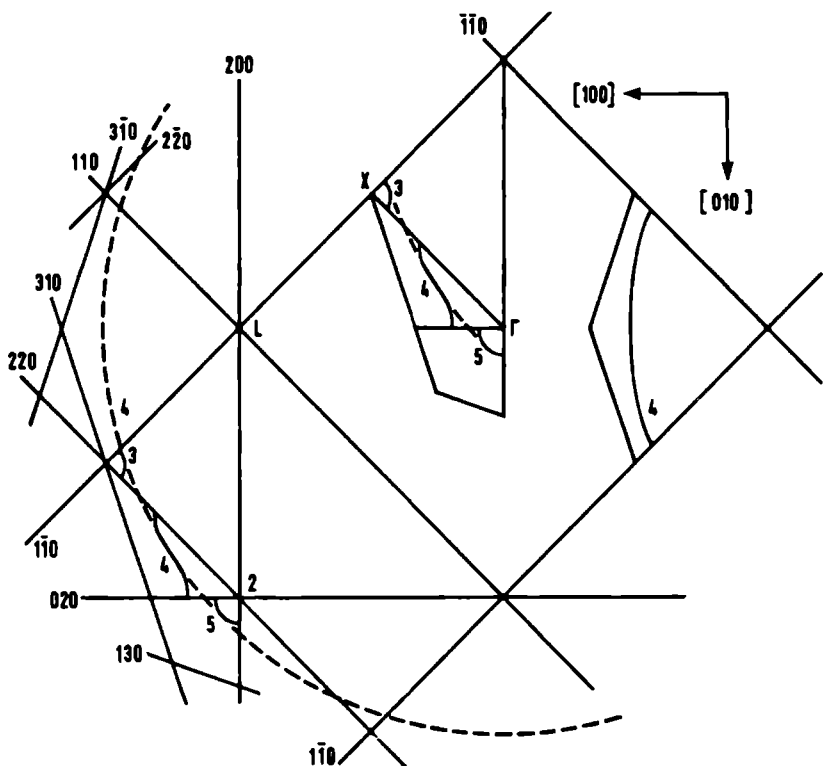


Fig.4.29. Niet-gereduceerd zoneschema, doorsnede $1[001]$; het verband met het gereduceerde zoneschema is fragmentarisch aangeduid. (vgl. fig.4.5)

dat $|V_{101}| = 0,12$.

Op PU (niet nabij P of U) is $E \approx E_0$ voor de derde en vierde zone. Een klein energieverschil als gevolg van spin-baan koppeling kan ook hier verwacht worden: W geeft op 0,013. Voor de vierde zone geldt in het hele LXP vlak dat de energie alleen van E_0 afwijkt als gevolg van spin-baan koppeling, behalve in de buurt van UK'. Op grond van onze H_3 meting hebben we de $4s$ baan geconstrueerd (zie fig. 4.20). Op de lijn UK' snijden (voor de vierde, vijfde en zesde zone) de $(\bar{1}10)$ en (121) vlakken elkaar, en is de determinant:

$$\begin{vmatrix} T & V_{1\bar{1}0} & V_{\bar{1}2\bar{1}} \\ V_{\bar{1}10} & T & V_{2\bar{1}\bar{1}} \\ V_{121} & V_{211} & T \end{vmatrix} = 0 \quad (4.28)$$

met als oplossingen ($S_{110} = 0$): $T_1 = 0$, $T_{2,3} = \pm \sqrt{2} |V_{211}|$. Volgens onze constructie snijdt het vierde zone FS UK' waar $E_0 = 2,46$, zodat $|V_{211}| = 0,11$.

In fig. 4.17 hebben we de 4τ baan zo geconstrueerd, dat het oppervlak overeenkomt met onze E oscillaties. Het snijpunt van ΓX (waar $E = E_0 + |V_{220}|$) met het FS hebben we daartoe eerst berekend m.b.v. de boven gevonden waarde voor $|V_{220}|$. We vinden dan dat het snijpunt met ΓL (waar $E = E_0 - |V_{200}|$) 0,23 van Γ ligt; hier is $E_0 = 2,52$, zodat $|V_{200}| = 0,21$.

De nauwkeurigheid van de berekende V_n 's is niet beter dan 10 à 20%. We vergelijken onze getallen (na ze gedeeld te hebben door de structuurfactor) met die van Animalu en Heine (1965), die van Weisz, en die van Cohen en Bergstresser (1966) (berekend uit optische metingen aan grauw tin), in tabel 4.9 en in fig. 4.30. We zien dat onze resultaten binnen de nauwkeurigheidsmarge met die van Animalu en Heine overeenstemmen, maar dat de overeenstemming met de resultaten van Weisz aanmerkelijk geringer is.

T a b e l 4.9
Fouriercomponenten van de roosterpotentiaal
(eenheid: $\frac{\hbar^2 k_0^2}{2m}$)

U_n	U_{200}	U_{101}	U_{220}	U_{211}
AH')	-0,236	-0,178	0,123	0,144
W	-0,347	-0,184	0,092	0,061
S	-0,21	-0,17	0,10	0,155
CB '')	-0,37	-0,26	0,15	0,17
$K_n/2k_F$	0,658	0,689	0,931	0,952
$ S_n $	1	$\frac{1}{2}\sqrt{2}$	1	$\frac{1}{2}\sqrt{2}$

') Animalu, Heine (1965); '') Cohen, Bergstresser (1966)

Onze berekening geeft geen uitsluitsel over de fase van de V_n 's. We kunnen het teken van U_n echter zonder bezwaar van Animalu en Heine overnemen, en de fase van V_n berekenen aan de hand van (4.22).

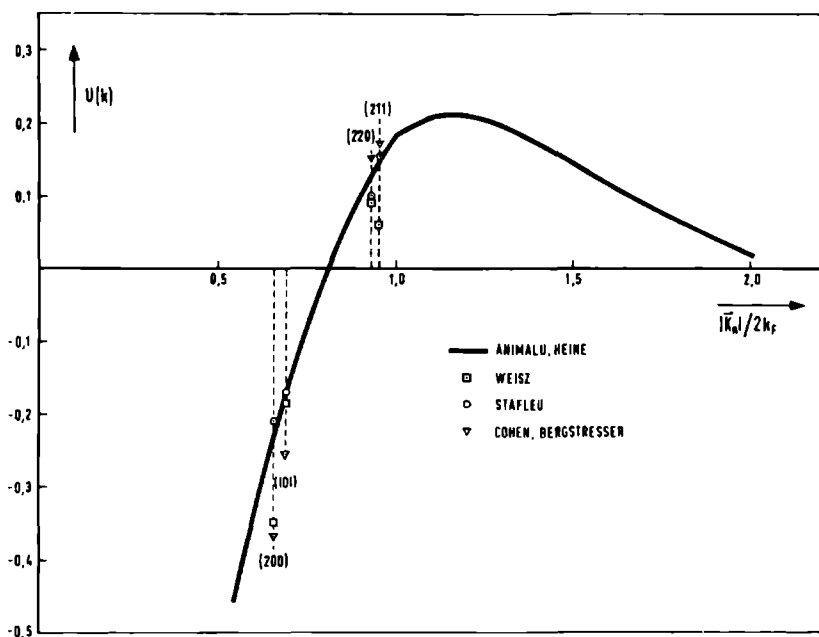


Fig.4.30. $U(k)$. berekend door Animalu en Heine (1965) (modelpotentiaal), Weisz (1966), Cohen en Bergstresser (1966), en ons.

4.3.4. Berekening van energieniveaus en FS parameters

We zullen nu in enkele speciale punten de energieniveaus berekenen, en enkele afmetingen van het FS bepalen. De resultaten worden gegeven in tabel 4.10 en 4.11, en in fig. 4.31.

a. In Γ geldt voor de tweede tot vijfde zone als determinant:

$$\begin{vmatrix} T & V_{\bar{2}\bar{2}0} & V_{\bar{2}00} & V_{0\bar{2}0} \\ V_{220} & T & V_{020} & V_{200} \\ V_{200} & V_{0\bar{2}0} & T & V_{2\bar{2}0} \\ V_{020} & V_{\bar{2}00} & V_{\bar{2}\bar{2}0} & T \end{vmatrix} = 0 \quad (4.29)$$

(vgl. fig. 4.29), met als oplossingen $T_{1,2} = |V_{220}|$ (de tweevoudige ont-aarding wordt door spin-baan koppeling opgeheven), $T_{3,4} = -|V_{220}| + \pm 2|V_{200}|$. Voor de vijfde zone komt het energieniveau daarmee bo-ven E_F , zodat deze zone bij Γ leeg is (vgl. § 4.2.4).

b. In X snijden voor de derde tot zesde zone de vlakken (220), (1 $\bar{1}$ 0),

en (310) elkaar (zie fig. 4.29). Omdat $S_{110} = S_{310} = 0$, worden de vier energieniveaus gegeven door $E = E_0 \pm |V_{220}|$. De tweevoudige ont-aarding van elk niveau wordt door spin-baan koppeling *niet* opgeheven.

c. In het niet-gereduceerde zoneschema komt W voor de tweede tot negende zone overeen met het punt (1; 1; 0,65), waar de BZB: (200), (020), (220), (101), (011), (211), en (121) doorgaan of met het punt (0; 1; -1,19), waar de BZB: (110), ($\bar{1}\bar{1}0$), (200), ($0\bar{1}\bar{1}$), ($12\bar{1}$), en ($\bar{1}2\bar{1}$) elkaar snijden. Uiteraard geldt voor beide punten dezelfde 8 x 8 determinant, met als oplossing (bij $S_{110} = 0$):

$$T_1 = |V_{200}|; T_2 = -2 |V_{200}| - |V_{220}|; T_{3,4} = \frac{1}{2} \left[3 |V_{200}| - |V_{220}| \pm \left[(3 |V_{200}| - |V_{220}|)^2 - 4 |V_{200}| (2 |V_{200}| + |V_{220}| + 16 (|V_{101}| - |V_{211}|)^2)^{\frac{1}{2}} \right] \right]; T_{5-8} = \frac{1}{2} \left[-|V_{200}| + |V_{220}| \pm \left[(|V_{200}| + |V_{220}|)^2 + 8 (|V_{101}| + |V_{211}|)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \right].$$

De tweevoudige ont-aarding van $T_{5,6}$ en $T_{7,8}$ wordt door spin-baan koppeling opgeheven: Weisz geeft een niveauverschuiving als gevolg van spin-baan koppeling voor een punt even onder W op ΓW voor de derde tot zesde zone resp. -0,025; +0,004; +0,020; +0,005. Uit onze berekening blijkt dat de eerste tot en met zesde zone bij W bezet zijn, hetgeen bevestigt dat de 2α en 3γ banen niet bestaan (zie § 4.2.1 en 4.2.2), dat de 4 (a) en 4 (b) zone via een nek met elkaar verbonden zijn (§ 4.2.3), dat de 'punt' van de vijfde zone 'peren' W omvat (§ 4.2.4), en dat er een 'pocket' van electronen in de zesde zone ontstaat (§ 4.2.5).

d. Voor de derde tot zesde zone komt V overeen met (0,5; 1; 0,92) waar de BZB (020), (101), en (121) elkaar snijden. De 4 x 4 determinant heeft als oplossingen $T_1 = -|V_{200}| - |V_{101}| - |V_{211}|$; $T_2 = -|V_{200}| + |V_{101}| + |V_{211}|$; $T_3 = |V_{200}| - |V_{101}| + |V_{211}|$; $T_4 = |V_{200}| + |V_{101}| + |V_{211}|$. Uit de berekening volgt dat de zesde zone bij V leeg is (zie § 4.2.5).

e. Voor de vierde tot zesde zone komt K overeen met (-0,75; -0,75; 1,05) waar de BZB ($\bar{2}\bar{1}1$) en ($\bar{1}2\bar{1}$) elkaar snijden, of met (0,25; 1,25; -0,79) waar ($\bar{1}10$) en ($12\bar{1}$) elkaar snijden. Met $S_{110} = 0$ is $T_1 = 0$, $T_{2,3} = \pm \sqrt{2} |V_{211}|$. Het energieniveau voor de zesde zone ligt 0,07 boven E_F . We kunnen hieruit afleiden dat als gevolg van de grotere waarde van $|V_{211}|$ de zesde zone rond het punt W kleiner zal zijn dan volgens het model van Weisz, en dat m.n. de 'horens' niet zo geprononceerd zullen zijn (vgl. § 4.2.5 en fig. 4.25). Evenmin als in de constructie van Weisz zal bij ons de vijfde zone in de buurt van K veel van het NFE afwijken.

f. Op de lijn UW (derde tot zesde zone, niet nabij U of W) snijden de BZB (220), (101), en (211), of (110), (011), en (211) elkaar. De 4×4 determinant heeft (met $S_{110} = 0$) als oplossingen:

$$T_{1,2} = \frac{1}{2} \left[|V_{220}| \pm \left[|V_{220}|^2 + 4(|V_{101}| + |V_{211}|)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \right] \text{ en}$$

$$T_{3,4} = \frac{1}{2} \left[-|V_{220}| \pm \left[|V_{220}|^2 + 4(|V_{101}| - |V_{211}|)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \right], \text{ dus}$$

$T = 0,29; 0; -0,10; -0,19$ voor resp. de derde tot zesde zone.

We merken allereerst op, dat de vierde zone blijkbaar weinig van het NFE af zal wijken, hetgeen uit fig. 4.19 al blijkt. Daarentegen schuift het derde-zone energieniveau sterk op, hetgeen overeenkomt met onze veronderstelling, dat de 'steunbogen' van het NFE in werkelijkheid niet bestaan (zie § 4.2.2). UW snijdt het FS waar $E_0 = 2,60$, d.i. 0,05 van U. Uit fig. 4.11 volgt een waarde van 0,07, zodat we kunnen afleiden dat de berekende waarden voor $|V_{220}|$, $|V_{101}|$ en $|V_{211}|$ iets aan de hoge kant zijn, maar een eventuele correctie valt binnen de nauwkeurigheidsmarge van 10%. Weisz vindt het snijpunt van het FS met UW op 0,20 van U (vgl. fig. 4.10). Dit verschil moet vnl. toegeschreven worden aan Weisz' lage waarde voor $|V_{211}|$, waardoor we (als we W's berekende V_n 's in T substitueren) $T = 0,21$ vinden voor de derde zone.

g. In het NFE loopt de lijn van Γ naar W' (boven H' in fig. 4.24) tussen de $5X$ en de 5ω baan door, zodat E_0 overal op $\Gamma W'$ groter is dan E_F . In het niet-gereduceerde zoneschema komt $\Gamma W'$ overeen met de snijlijn van (200) en (121), of van $(\bar{1}\bar{2}\bar{1})$ en $(1\bar{2}\bar{1})$. De 3×3 determinant heeft als oplossingen

$$T_1 = -|V_{200}|, T_{2,3} = \frac{1}{2} \left[|V_{200}| \pm \left[|V_{200}|^2 + 8|V_{211}|^2 \right]^{\frac{1}{2}} \right]$$

zodat $T = 0,29; -0,08$ en $-0,21$ voor de vijfde tot zevende zone. We zien dat het vijfde zone energieniveau aanmerkelijk daalt, hetgeen bevestigt dat het 'gat' in de vijfde zone, en daarmee de $5X$ en 5ω banen niet bestaan (zie § 4.2.4).

h. De afronding van de 5σ baan wordt beheerst door V_{101} . Onze constructie (fig. 4.23), die overeenkomt met onze F_2 oscillaties, is hierop gebaseerd: in de $[100]$ richting is $E = E_0 + |V_{101}|$, in de $[110]$ richting is $E = E_0 + \sqrt{2}|V_{101}|$. Dat Weisz voor de corresponderende dHvA frequentie een grotere waarde berekent dan wij gemeten hebben, is niet te verklaren uit zijn berekende waarde van $|V_{101}|$, die juist tot een kleinere dHvA frequentie zou moeten leiden.

i. In de $5v_1$ baan (fig. 4.26) is de energie recht boven en onder V : $E = E_0 + |V_{200}|$, zodat $E_0 = 2,52$ op het snijpunt met het FS is, dat daarom 0,21 van V ligt. Als gevolg van de grotere waarde van $|V_{200}|$ vindt

Weisz een grotere diameter. Op analoge wijze worden ook de andere afmetingen van deze doorsnede bepaald, evenals die van de 5λ baan (vgl. fig. 4.22).

<p style="text-align: center;">T a b e l 4.10</p> <p style="text-align: center;">Energieniveaus in enkele punten van de Brillouinzone</p> <p>(berekend met verwaarlozing van spin-baan koppeling; eenheid: $\frac{\hbar^2 k_0^2}{2m}$)</p>						
			volgens S		volgens W	
punt	E_0	zone	E	$E - E_F$	E'	$E - E_F$
Γ	2,00	2	1,68	-0,63	1,39	-0,85
		3,4	1,90	-0,41	1,84	-0,40
		5	2,52	0,21	2,71	0,47
X	2,50	3,4	2,40	0,09	2,33	0,09
		5,6	2,60	0,29	2,51	0,27
W	2,42	2	2,10	-0,21	1,75	-0,49
		3	2,11 ["])	-0,20	2,06	-0,18
		4	2,11 ["])	-0,20	2,08	-0,16
		5	2,21	-0,10	2,14 ["])	-0,10
		6	2,21	-0,10	2,14 ["])	-0,10
		7,8	2,83	0,52	2,79	0,55
		9	2,94	0,63	3,12	0,88
		3	1,87	-0,44	1,69	-0,55
		4	1,89	-0,42	1,84	-0,40
V	2,09	5	2,07	-0,24	2,08	-0,16
		6	2,53	0,22	2,53	0,29
		4	2,08	-0,23		
K	2,23	5	2,23	-0,08		
		6	2,38	0,07		
E_F	2,31		2,31		2,24	
[']) ontleend aan fig.4.32 ["]) In het punt W zijn volgens S de derde en vierde zone ontaard, volgens W de vijfde en zesde zone.						

Uit de bovengenoemde punten hebben we de figuren in § 4.2 geconstrueerd, zodanig dat de doorsneden overeenkomen met de gemeten dHvA frequenties. In tabel 4.11 is een aantal lineaire afmetingen vermeld.

T a b e l 4,11
Lineaire afmetingen van het FS
(‘halve diameters’; eenheid: $k_0 = \frac{2\pi}{a}$)

baan	richting	NFE	G vlgs. W	W	S
3 δ_1	FX	0,144	12 ₂ : 0,083	0,07	0,067
3 δ_1	LX	0,070		0,05	0,067
3 δ_2	FXP	-	10 ₂ : 0,125	0,145	\geq 0,093
3 δ_2	LXP	-	11 ₂ : 0,093	0,087	\leq 0,093
3 ϵ	XP	0,495		0,445	\approx 0,48
4 τ	FL	0,15		0,26	0,23
4 τ	[100] *)	0,40	4 ₁ : 0,305	0,34	0,33
4 τ	FX	0,57	2 ₂ : 0,43	0,46	0,46
4 ζ	FL	0,52	1 ₁ : 0,515	0,51	0,49
4 ζ	LX	0,65	1 ₂ : 0,66	0,66	0,64
nek	[100]	-	15 ₁ : 0,19	0,17	0,17
nek	[110]	-		0,23	\approx 0,17
4 η	[100] *)	-	6 ₃ : 0,547	\approx 0,53	\approx 0,52
4 η	[001] *)	-	9 ₁ : 0,51	\approx 0,525	\approx 0,53
oorring	[100] *)	-	1 ₃ : 0,176 ')	0,155	\approx 0,165
oorring	[110] *)	-	1 ₃ : 0,27 ')	0,24	\approx 0,27
4 ϵ	XP	0,495	9 ₂ : 0,49	0,52	\approx 0,51
5 λ	PV	0,395	2 ₁ : 0,35	0,35	0,345
5 λ	[110]	0,42		0,44	0,43
5 σ	[100]	0,46	3 ₁ : 0,40	0,42	0,40
5 σ	[110]	0,57	3 ₂ : 0,48 ')	0,51	0,46
5 ν_1	[001]	0,12		0,245	0,21
5 ν_1	[100]	0,11		0,15	0,15
5 ν_1	[001] *)	0,345	6 ₁ : 0,25	0,32	0,29
5 θ	[001]	-	7 ₁ : 0,425	0,45	\approx 0,43
open	[100]	0,46	2 ₃ : 0,405	0,42	0,40
5 ψ	[001]	0,41	7 ₂ : 0,42	0,475	0,465
5 ψ	[110]	0,57	2 ₃ : 0,466	0,51	0,46
6	[100]	-	12 ₁ : 0,065	0,177	0,09
6	[100] *)	-	1 ₃ : 0,176 ")	0,18	-
6	FXH	-	13 ₁ : 0,10 ')	0,15	0,09
6	[110] *)	-	1 ₃ : 0,27 ")	0,37	-
6	[110]	-			0,125

') volgens interpretatie S; ") onjuist volgens S;

*) niet-centrale diameter

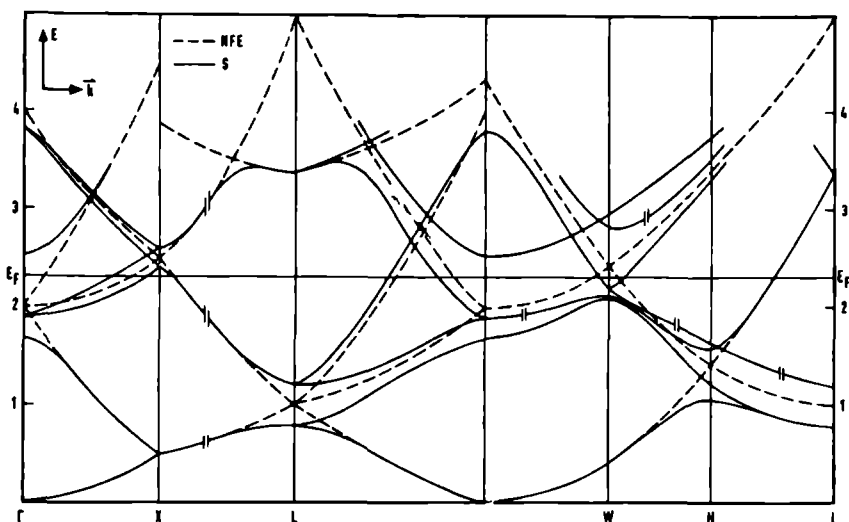


Fig.4.31a. $E(\vec{k})$ volgens het NFE en volgens onze berekening.
 Door spin-baan koppeling (hier verwaarloosd)
 worden alle tweevoudige ontandingen verbroken, behalve in X en L.

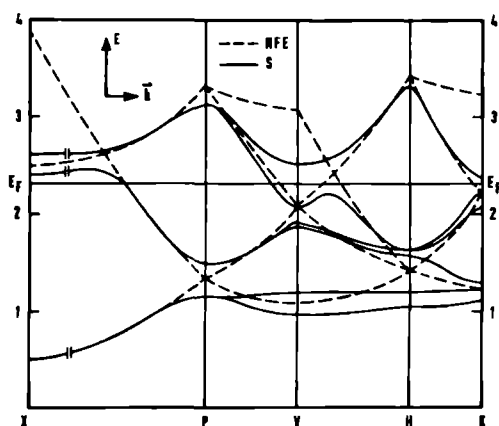


Fig.4.31b. Zie fig.4.31a.

Aande hand van de tabellen 4.10 en 4.11 zijn in fig. 4.31 $E(\vec{k})$ krommen geschetst. De figuur kan vergeleken worden met de overeenkomstige figuur 4.32, die we aan Weisz ontlelen. De $E(\vec{k})$ krommen volgens het NFE zijn ten dele ontleend aan Miasek (1962). Fig. 4.31 is schetsmatig: berekend zijn alleen de energieniveaus in de aangegeven speciale punten en de snijpunten met het Fermi-niveau.

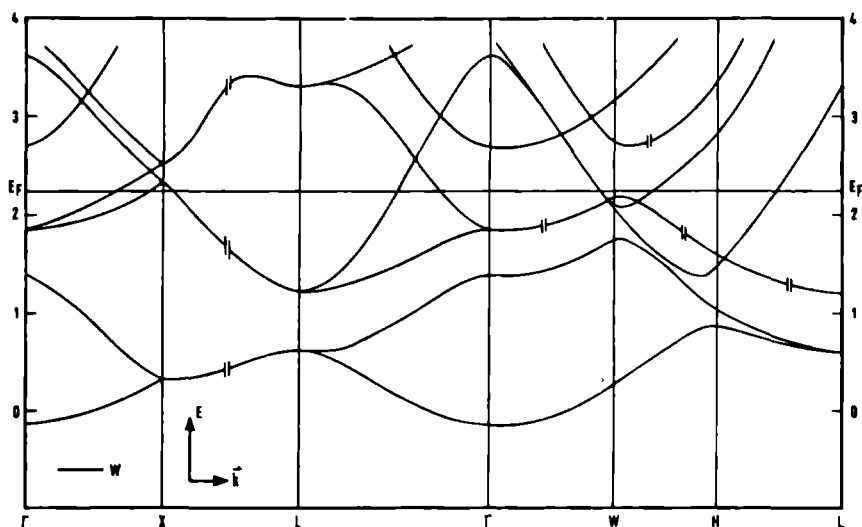


Fig.4.32a. $E(\vec{k})$ volgens Weisz (1966). Spin-baan koppeling is verwaarloosd.

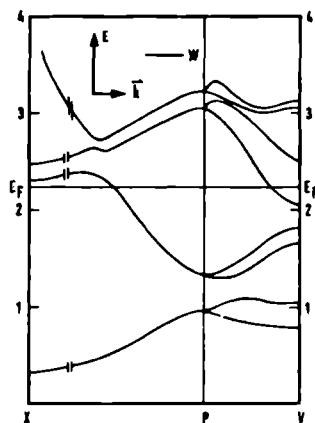


Fig.4.32b. Zie fig.4.32a.

Resteert ons nog op te merken, dat de $E(\vec{k})$ kromme voor de vierde zone in de buurt van het punt W zeer vlak verloopt, zodat voor de nek dE/dA klein, en dus de cyclotronmassa groot zal zijn (vgl. §1.2 en 4.2.3). Voorts liggen de energieniveaus voor de vierde, vijfde en zesde zone nabij het punt W zeer dicht bij elkaar, zodat magnetic breakdown hier zeer wel tot de mogelijkheden behoort (vgl. § 4.2.6).

4.3.5. Conclusie

We hebben in dit hoofdstuk het overgrote deel van onze meetresultaten kunnen interpreteren in termen van een enigszins gemodificeerd NFE. De belangrijkste afwijkingen treden op in die punten van de BZ, waar ze verwacht kunnen worden: in Γ , V , K , en vooral in het punt W . Intussen leiden deze afwijkingen tot enkele belangrijke veranderingen in de topologie van het FS. Anderzijds blijken grote stukken van het FS ook in onze constructie goed benaderd te worden door het NFE.

Onze resultaten komen kwalitatief goed overeen met de bandberekeningen van Weisz, gebaseerd op de metingen van Gantmakher. Het is echter mogelijk gebleken aan de hand van onze meetresultaten de berekening van Weisz te corrigeren, en zo een betere overeenstemming te verkrijgen met de 'modelpotential' van Animalu en Heine.

De kwantitatieve overeenstemming tussen onze meetresultaten en die van Gantmakher en van Olsen is niet erg bevredigend. Het verdient dan ook aanbeveling hun experimenten te herhalen en opnieuw te analyseren, zoals wij de metingen van Gold en Priestley herzien hebben. Wanneer dit zou leiden tot een betere overeenstemming tussen de resultaten van de verschillende meetmethoden zou een nieuwe bandberekening kunnen resulteren in een nauwkeurige en betrouwbare weergave van de bandstructuur van wit tin.

SUMMARY

Measurements of the de Haas-van Alphen effect (dHvA) have been performed, to determine the shape of the Fermi surface (FS) of white tin.

In the introductory chapter one, several aspects of the dHvA are discussed, as well as the principle of measurement, in which we follow the Shoenberg-Stiles (1964) method. By the dHvA is understood the oscillatory behaviour of the magnetization of a metal single crystal, as a function of the magnetic field \vec{H} ; the oscillations are demonstrated to be periodical in $1/H$, the frequency F being proportional to the area of an extremal cross-section of the FS, perpendicular to \vec{H} . In tin there are for every orientation of \vec{H} with respect to the crystal axes several extremal cross-sections, and consequently several dHvA frequencies.

On the magnetic field, which is varied slowly, and inversely proportional to time, a small sweepfield with frequency 10 kc/s is superimposed. The non-linear field dependence of the magnetization causes a second harmonic voltage on a pickup coil, which is amplified, and detected by a lock-in amplifier. The resulting ultra low frequency signal is selectively amplified, and recorded on an X-Y recorder against $1/H$. The apparatus has been described in chapter two.

In the third chapter we describe the results of measurement, which have been published earlier in less detail (Stafleu, de Vroomen (1966)). We have measured the dHvA frequencies as a function of the orientation of \vec{H} in the three principal planes of symmetry. The results are compared with the former measurements of Shoenberg (1952), Berlincourt (1952), Croft et al. (1954), and Gold and Priestley (1960), and it is shown that ours don't contradict the older results, but supply many more details. The measurements are divided in 33 branches, and in three groups, of low, medium, and high dHvA frequencies. It is shown that for most low frequency branches (A, B, C, D, and N, except C_3 and D_3) the shape of the corresponding parts of the FS can be constructed without the use of any model. This is not possible for the medium and high frequency results. The accuracy of the last mentioned is not very good.

The fourth chapter deals with the interpretation of our results. First we discuss the nearly-free-electron model (NFE) for white tin, and the calculated shape of the FS by Weisz (1966), whose calculations are based on measurements of Gantmakher (1963, 1964).

In the second part of this chapter we compare our results with the NFE and Weisz' calculations. It is demonstrated that our results agree qualitatively well with the last mentioned, but that we are able to suggest substantial quantitative corrections.

The first and second Brillouin zones appear to be completely filled.

The third zone (in the NFE a multiply connected open surface) contains two similar surfaces (but rotated 90° around $[001]$ with respect to each other) centered in the point X. Each surface has a 'dumb-bell' shape, and is nearly a surface of revolution around $[001]$. The corresponding dHvA branches are those denoted by A, B, and N.

In the NFE the fourth zone consists of two separated surfaces: a multiply connected surface, consisting of 'cilinders', centered in L, and with LH' as axis, connected by an irregularly shaped 'roof', and a closed surface, centered in Γ , with a peculiar 'double pancake' shape. Our measurements confirm Weisz' construction, wherein these two surfaces are connected in the neighbourhood of the point W, forming a 'neck'. Our branches E, G, H₃, K₁, and M₂ correspond with the fourth zone.

The fifth zone consists of 'pears', centered in H and H', conversely top-up and top-down, and mutually connected. Our measurements F₁, F₂, H₁, H₂, L₃, and L₄ correspond with this part of the FS. According to the NFE, there should also be a closed surface centered in Γ , but like Weisz we believe that the fifth zone is empty at Γ .

The sixth zone has an entirely other shape than follows from the NFE, and from Weisz' calculations: it is a rounded-off cube, in the neighbourhood of the point W. Our measurements C₁ and C₂ belong to this part of the FS.

We have shown that breakdown may occur in the LXP plane between the third and the fourth zone, and in the neighbourhood of the point W between the fourth, fifth, and sixth zones. In this way we are able to interpret our measurements K (except K₁), L₁, and M₁.

The D₁, D₂, and L₂ measurements are interpreted as second harmonics of C₁, C₂, and K₁, respectively. We have no interpretation of C₃, D₃, and F₃. On the other hand, we have not measured a dHvA frequency with \vec{H} along $[001]$, which might correspond with the 'neck' in the fourth zone. It is argued that this orbit may be not very favourable for a measurable dHvA effect.

In the third part of chapter four we present a first order perturbation

calculation based on our measurements, of the Fourier components of the lattice potential, neglecting spin-orbit effects. Our result is found to agree better with the 'model potential' of Animalu and Heine (1965) than that of Weisz'. From our measurements and calculations we are able to construct the shape of the FS.

We may conclude that the FS of white tin resembles the shape obtained from the NFE; the most important deviations occur at those points in the fundamental Brillouin zone, where they are to be expected: at the points Γ , V, K, and especially at the point W. These deviations lead to some important alterations in the topology of the FS, but, on the other hand, the major parts of the FS are very well approximated by the NFE.

REFERENTIES

- N.E.Alekseevskii, Yu.P.Gaidukov (1961), JETP 41, 1079; Sov.Phys. JETP 14 (1962) 770
- N.E.Alekseevskii, Yu.P.Gaidukov, I.M.Lifshitz, V.G.Peschanskii (1960), JETP 39, 1201; Sov.Phys. JETP 12 (1961) 837
- P.B.Alers (1957), Phys.Rev. 107, 959
- J.R.Anderson, A.V.Gold (1965), Phys.Rev. 139, A 1459
- A.O.E.Animalu, V.Heine (1965), Phil.Mag. 12, 1249
- N.W.Ashcroft (1963), Phil.Mag. 8, 2055
- N.W.Ashcroft, J.W.Wilkins (1965), Phys.L. 14, 285
- C. van Baarle (1965), 'Thermospanning in Metalen', diss. Leiden
- T.G.Berlincourt (1952), Phys.Rev. 88, 242
- K.Bordoloi, C.G.Grenier, J.M.Reynolds (1965), Bull.Am.Phys.Soc. 10, 127
- W.Broshar, B.McCombe, G.Seidel (1966), Phys.Rev.L. 16, 235
- Yu.A.Bychkov, L.P.Gor'kov (1961), JETP 41, 1592; Sov.Phys.JETP 14 (1962) 1132
- R.G.Chambers (1952), Proc.Roy.Soc. A215, 481
- M.H.Cohen, E.I.Blount (1960), Phil.Mag. 5, 115
- M.L.Cohen, T.K.Bergstresser (1966), Phys. Rev. 141, 789
- J.H.Condon (1966), Phys.Rev. 145, 526
- G.T.Croft, W.F.Love, F.C.Nix (1954), Phys.Rev. 95, 1403
- R.B.Dingle (1952), Proc.Roy.Soc. A211, 517
- R.J.Elliott (1954), Phys.Rev. 96, 280
- A.Fukumoto, M.W.P.Strandberg (1966), Phys.L.23, 200
- V.F.Gantmakher (1963), JETP 44, 811; Sov.Phys. JETP 17 (1963) 549
- V.F.Gantmakher (1964), JETP 46, 2028; Sov.Phys. JETP 19 (1964) 1366
- V.F.Gantmakher, I.P.Krylov (1965), JETP 49, 1054; Sov.Phys. JETP 22 (1966) 734
- A.P. van Gelder (1966), Phys.L. 22, 7
- M.L.Glasser (1966), Phys.Rev.L. 16, 1159
- A.V.Gold (1958), Phil.Trans.Roy.Soc. A251, 85
- A.V.Gold, M.G.Priestley (1960), Phil.Mag. 5, 1089
- A.Goldstein, S.J.Williamson, S.Foner (1965), Rev.Sci.Instr. 36, 1356

- W.J. de Haas, P.M. van Alphen (1930), *Commun.Phys.Lab., Un.Leiden*, no.212a
- W.A.Harrison (1959), *Phys.Rev.* 116, 555
- W.A.Harrison (1960), *Phys.Rev.* 118, 1190
- W.A.Harrison (1966), 'Pseudopotentials in the Theory of Metals' (New York)
- D.A.Hays, W.L.McLean (1965), *Phys.L.* 17, 215
- R.J.Kearny, A.R.Mackintosh, R.C.Young (1965), *Phys.Rev.* 140, A 1671
- M.S.Khaikin (1961), *JETP* 41, 1773; *Sov.Phys. JETP* 14 (1962) 1260
- M.S.Khaikin (1962a), *JETP* 42, 27; *Sov.Phys. JETP* 15 (1962) 18
- M.S.Khaikin (1962b), *JETP* 43, 59; *Sov.Phys. JETP* 16 (1963) 42
- P.G.Klemens, C. van Baarle, F.W.Gorter (1964), *Physica* 30, 1470
- J.F.Koch, A.F.Kip (1962), *Phys.Rev.L.* 8, 473
- J.F.Koch, C.C.Kuo (1966), *Phys.Rev.* 143, 470
- C.O.Larson, W.L.Gordon (1965), *Phys.L.* 15, 121
- A.P.Lenham, D.M.Treherne, A.J.Woodall (1965), in 'Optical Properties and Electronic Structure of Metals and Alloys', (F.Abelès, ed.), *Proc.Int.Coll., Paris (Amsterdam 1966)*, p. 40
- I.M.Lifshitz, A.M.Kosevich (1955), *JETP* 29, 730; *Sov.Phys. JETP* 2 (1956) 636
- J.M.Luttinger (1961), *Phys.Rev.* 121, 1251
- S.Mase (1959), *J.Phys.Soc.Japan* 14, 1538
- M.Miasek (1962), *Bull.Acad.Polon.Sci., Ser.Math.Astron.Phys.* 10, 39
- M.Miasek (1963), *Phys.Rev.* 130, 11
- M.Miasek (1966), *Acta Physica Polonica* 29, 141
- M.Miasek, M.Suffczynski (1961), *Bull.Acad.Polon.Sci., Ser.Math.Astron. Phys.* 9, 477, 483, 609
- T.Olsen (1963), *J.Phys.Chem.Solids* 24, 649
- L.Onsager (1952), *Phil.Mag.* 43, 1006
- A.B.Pippard (1962), *Proc.Roy.Soc.* A270, 1
- A.B.Pippard (1963), *Proc.Roy.Soc.* A272, 192
- J.M.Reynolds, R.G.Goodrich, S.A.Khan (1966), *Phys.Rev.L.* 16, 609
- D.Shoenberg (1952), *Phil.Trans.Roy.Soc. A* 245, 1
- D.Shoenberg (1957), in 'Progress in Low Temperature Physics', (C.J. Gorter, ed.), vol. II (Amsterdam), p. 226
- D.Shoenberg, P.J.Stiles (1963), *Phys.L.* 4, 274
- D.Shoenberg, P.J.Stiles (1964), *Proc.Roy.Soc.* A281, 62
- F.W.Spong, A.F.Kip (1965), *Phys.Rev.* 137, A 431
- M.D.Stafleu, A.R. de Vroomen (1966), *Phys.L.* 23, 179
- M.Suffczynski (1961), *Bull.Acad.Polon.Sci., Ser.Math.Astron.Phys.* 9, 489

G.Weisz (1966), Phys.Rev. 149, 504
W.B.Whitten, A.Piccini (1966), Phys.L. 20, 248
J.W.Wilkins, J.W.F.Woo (1965), Phys.L. 17, 89
S.J.Williamson, S.Foner, R.A. Smith (1964), Phys.Rev. 136, A 1065
R.C.Young (1965), Phys.Rev.L. 15, 262
J.Zak (1964), Phys.Rev. 136, A 776
International Tables for X-ray Crystallography (1952), vol. I (N.F.M.
Henry, K.Lonsdale, eds.; Birmingham)

STELLINGEN

I

Het is niet correct de tot nu toe bestaande theorie van het de Haas-van Alphen effect af te leiden uit de quantummechanische commutatierelaties, i.p.v. uit de klassieke 'Poisson-haakjes'.

I.M. Lifshitz, A.M. Kosevich, JETP 29 (1955) 730;

Sov. Phys. JETP 2 (1956) 636

Dit proefschrift, § 1.2

II

Door de manier waarop Weisz de pseudopotentiaal in zijn bandberekening introduceert onttrekt hij zich de mogelijkheid theoretisch berekende modellen te vergelijken met experimentele gegevens.

G. Weisz, Phys. Rev. 149 (1966) 504

Dit proefschrift, § 4.3

III

Draaidiagrammen van wit tin met \vec{H} in (001), opgenomen m.b.v. een automatisch gecompenseerde torsiebalans, kunnen toegepast worden om de hoekvariatie van de dHvA frequentie van de C_1 oscillaties te bepalen. Uit de analyse van deze diagrammen volgt, dat het zesde zone FS 1[100] behalve een centrale, minimale doorsnede ook twee maximale, niet-centrale doorsneden heeft; de resp. oppervlakken verschillen 2%.

Dit proefschrift, § 2.4.2 en § 4.2.5

IV

Het Fermi-oppervlak van platina bestaat o.m. uit drie ellipsoïden, met hoofdassen $a = b = 5,85 \times 10^6 \text{ cm}^{-1}$ en $c = 9,02 \times 10^6 \text{ cm}^{-1}$ in de [100] richtingen.

M.D. Stafleu, A.R. de Vroomen, Phys.L. 19 (1965) 81

V

Het dilemma: natuurnoodzakelijkheid of toeval, zoals dat door Van Melsen gesteld wordt, is aanvechtbaar.

A.G.M. van Melsen, Natuurwetenschap en Wijsbegeerte (Utrecht 1946), hoofdstuk VI

A.G.M. van Melsen, Natuurfilosofie (Antwerpen 1955), hoofdstuk VI

VI

Tegen het gebruik van het correspondentieprincipe, uit een grensgeval het algemene formalisme van de quantummechanica af te leiden, zijn bezwaren aan te voeren.

Bij stellingen V en VI: M.D. Stafleu, Philosophia Reformata 31 (1966) 126

VII

Het is niet juist electronen 'identiek' en 'onderling ononderscheidbaar' te noemen.

VIII

De afleiding van de tweede-orde interactie tussen polaire moleculen door Van der Avoird en Hofelich bevat een fout, waardoor zij ten onrechte concluderen, dat de dipool-geïnduceerde dipool interactie berekend volgens de quantumfysica, steeds kleiner is dan het klassieke resultaat.

*A. van der Avoird, F. Hofelich, J.Chem.Phys. 45 (1966)
4664*

IX

Door af te wijken van de gewoonte, de inhoudsopgave van een boek op een rechterpagina te laten beginnen, zou men in een aantal gevallen de overzichtelijkheid ervan bevorderen.

M.D. Stafleu

14 april 1967

